

Inscrit au archives originales
du Centre de Documentation

ORSAY
Série A, N°
N° D'ordre : 795

C.N.R.S. sous le n°

A.O. 5863

T H E S E

présentée

A L' UNIVERSITE PARIS-SUD

Centre d'Orsay

pour obtenir

le grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Daniel SPANJAARD

Etudes d'impuretés radioactives dans les solides par orientation nucléaire.

Soutenue le 10 Juin 1971 devant la Commission d'Examen.

MM. J. FRIEDEL

Président

J.P. DESCOUBES

F. HARTMANN

Examineurs

I.A. CAMPBELL

N.J. STONE (invité)

Inscrit au archives originales
du Centre de Documentation

C.N.R.S. sous le n°

A.O. 5863

T H E S E

présentée

A L' UNIVERSITE PARIS-SUD

Centre d'Orsay

pour obtenir

le grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Daniel SPANJAARD

Etudes d'impuretés radioactives dans les solides par orientation nucléaire.

Soutenue le 10 Juin 1971 devant la Commission d'Examen.

MM. J. FRIEDEL

Président

J.P. DESCOUBES

F. HARTMANN

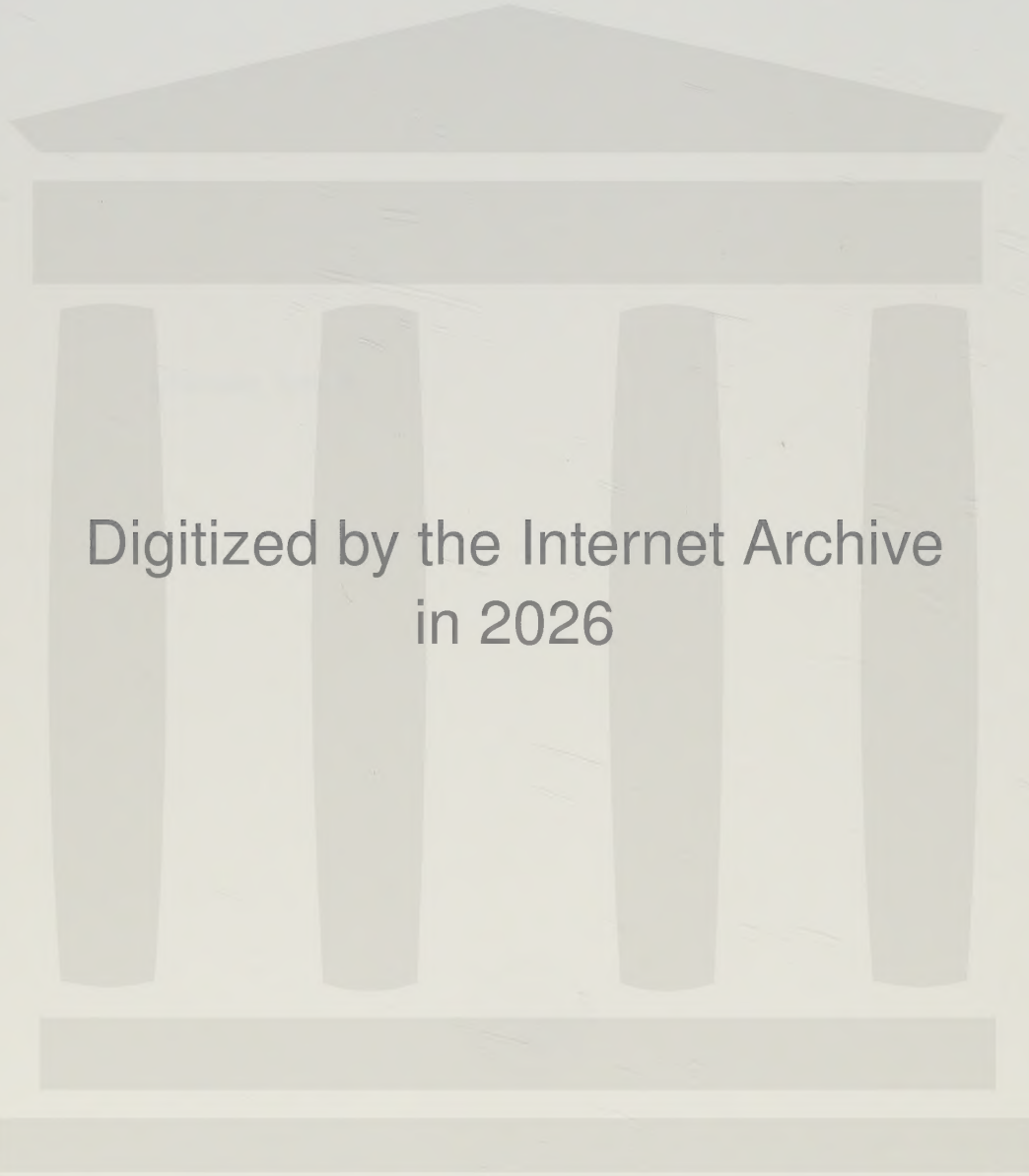
Examineurs

I.A. CAMPBELL

N.J. STONE (invité)



à mes parents



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550410_0009

R E M E R C I E M E N T S

Je tiens à remercier :

Le Professeur J. FRIEDEL qui non seulement m'a accueilli au laboratoire de Physique des Solides mais aussi m'a soutenu de ses marques d'intérêt et de ses conseils.

Madame F. HARTMANN-BOUTRON et Monsieur I.A. CAMPBELL, qui ont dirigé mon travail. Madame F. HARTMANN-BOUTRON m'a initié à la recherche théorique et je lui suis profondément reconnaissant de la part active qu'elle a pris à ce travail avec la plus grande gentillesse et pour mon plus grand profit. J'ai également une dette de reconnaissance envers Monsieur I.A. CAMPBELL pour m'avoir fait bénéficier de sa science, qu'il sait communiquer avec une joyeuse cordialité.

Monsieur J.L. SARROUY qui a mis à ma disposition le séparateur d'isotopes de l'I.P.N.

Monsieur LEVY ainsi que toute l'équipe du séparateur et plus particulièrement J. OBERT, dont la compétence n'a d'égale que la gentillesse.

Le "Clarendon Laboratory" où une grande partie de ce travail a été exécutée, et en particulier :

- Monsieur N.J. STONE qui a bien voulu m'y accueillir et se prêter à de nombreuses discussions.

- Messieurs R.A. FOX, J.D. MARSH, P.D. JOHNSTON sans l'aide desquels je n'aurais pu mener à bien mes expériences.

Messieurs H. BERNAS et J. FLOUQUET avec qui j'ai également collaboré à divers stades.

Monsieur D. DAUTREPPE, Chef de service au C.E.N.G. qui m'a fait fabriquer dans son laboratoire de nombreux échantillons, et Monsieur VANONI responsable de leur qualité.

Monsieur P. ROGELET et Mesdames LIGONNIERE et VASSENT qui m'ont souvent aidé dans la manipulation des sources radioactives.

Mesdames LANOUZIERE et THAISSEN pour la difficile frappe et le tirage de cette thèse.

Madame TOUCHANT et Monsieur SAINT MARTIN à qui je dois la qualité des illustrations.

Tous mes camarades du Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay et du Clarendon Laboratory d'Oxford, avec lesquels il est si agréable de travailler.

TABLE DES MATIERES

	Pages
INTRODUCTION	1
CHAPITRE I : L'HAMILTONIEN HYPERFIN	3
I/ <u>Introduction</u>	3
II/ <u>Interaction hyperfine d'un ion libre</u>	4
1°) Interaction hyperfine magnétique	4
2°) Interaction quadrupolaire	6
III/ <u>Interactions hyperfines d'un ion dans un cristal</u>	7
1°) Cas d'un cristal ionique	7
2°) Cristal métallique non magnétique	9
3°) Cristal métallique ferromagnétique	9
4°) Impuretés non magnétiques dans un métal ferromagnétique	12
CHAPITRE II : CARACTERISTIQUES GENERALES DU RAYONNEMENT EMIS AU COURS D'UNE CASCADE $\gamma_1 - \gamma_2$	13
I/ <u>Généralités</u>	
II/ <u>Caractéristiques générales du rayonnement émis</u> au cours d'une cascade $\gamma_1 - \gamma_2$	14
1°) Notations et hamiltonien de départ	14
2°) Equations couplées. Effets de l'émission spon- tanée sur le niveau intermédiaire	17
3°) Cascade $\gamma_1 - \gamma_2$: formules générales	19
4°) Applications : corrélations angulaires perturbées	23
5°) Orientation nucléaire	24
III/ <u>Utilisation du formalisme des opérateurs tenso- riels irréductibles</u>	25
1°) Notations	25
2°) Relation entre l'évolution temporelle des σ_k^q et les facteurs de perturbation des corréla- tions angulaires	26
3°) Couplage entre les σ_k^q des différents niveaux au cours des processus d'émission spontanée électro- magnétique	26

CHAPITRE III : EFFETS DE LA RELAXATION	30
I/ <u>Généralités</u>	30
II/ <u>Effets de la relaxation dans les expériences de</u> <u>corrélations angulaires perturbées</u>	30
1°) τ_c est court par rapport aux périodes propres du noyau	31
2°) τ_c est quelconque	34
III/ <u>Relaxation dans les expériences d'orientation</u> <u>nucléaire</u>	42
CHAPITRE IV : EFFETS DE LA RADIOFREQUENCE	44
I/ <u>Effets de la radiofréquence dans les expériences de</u> <u>corrélations angulaires perturbées</u>	44
1°) Hamiltonien de couplage entre le noyau dans l'état intermédiaire I et le champ de radiofréquence	44
2°) Application : effet de la radiofréquence sur les mesures de corrélations angulaires perturbées	45
3°) Effet de la relaxation	47
II/ <u>Effet de la radiofréquence dans les expériences</u> <u>d'orientation nucléaire</u>	47
1°) Effet de la radiofréquence en l'absence de relaxation	47
2°) Effet de la radiofréquence en présence de relaxation	48
CHAPITRE V : ORIENTATION NUCLEAIRE - PRINCIPES ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES	57
I/ <u>Généralités</u>	57
II/ <u>Orientation nucléaire magnétique</u>	58
1°) Principe	58
2°) Calcul des coefficients B_k dans un champ statique	59
III/ <u>Orientation nucléaire à l'aide d'un gradient</u> <u>quadrupolaire électrique</u>	60
1°) Principe	60
2°) Calcul des coefficients B_k	61
IV/ <u>Orientation nucléaire à l'aide d'effets magnétiques</u> <u>et quadrupolaires combinés</u>	61
V / <u>Résonance</u>	62
1°) Généralités	62
2°) Résonance dans les métaux ferromagnétiques : conditions d'observation	63

VI/ <u>L'appareillage</u>	65
1°) Le cryostat	65
2°) Le thermomètre	66
3°) Le système de comptage	66
VII/ <u>Traitement des résultats</u>	66
CHAPITRE VI : IMPLANTATIONS ET INTERACTIONS HYPERFINES	69
I/ <u>Etude de l'implantation et réalisation d'un montage</u> . .	69
1°) Influence de l'incidence du faisceau	69
2°) Influence de l'énergie du faisceau : calcul des parcours d'ions implantés	70
3°) Situation de l'ion implanté	72
4°) Réalisation d'un montage d'implantation	73
II/ <u>Interactions hyperfines d'ions implantés dans les métaux</u>	76
1°) Généralités	76
2°) Interactions hyperfines de l'or et du cérium implantés dans le fer	77
3°) Autres études sur les systèmes implantés	82
III/ Conclusion	83
CHAPITRE VII : MESURES DE TEMPS DE RELAXATION PAR ORIENTATION NUCLEAIRE	85
I/ <u>Généralités</u>	85
II/ <u>Absence d'une température de spin</u>	86
1°) Généralités	86
2°) Calcul des largeurs de raies δ	88
3°) Calcul de la pulsation ω_1	92
4°) Calcul de $T_{\uparrow\downarrow}$	93
III/ <u>Relaxation du Co^{60} dans le fer et le nickel</u>	94
1°) Méthode expérimentale	94
2°) Analyse des résultats	96
IV/ <u>Relaxation du Zn^{65} dans le fer</u>	97
1°) Méthode expérimentale	97
2°) Analyse des résultats	98
V/ <u>Relaxation de l'Ag^{109m} dans le fer et le nickel</u> . . .	98
1°) Généralités	98
2°) Méthode expérimentale	99
3°) Les résultats	101

CHAPITRE VIII	: ORIENTATION DE L' Yb^{175} DANS L'OR, L'ARGENT, LE FER ET LE	
	NICKEL	105
I/	<u>Introduction</u>	105
	1°) Généralités	105
	2°) Schéma de désintégration de l' Yb^{175}	105
II/	<u>Orientation de l'Ytterbium dans l'or</u>	106
	1°) Généralités	106
	2°) Préparation des échantillons	108
	3°) Les résultats	109
	4°) Etude de l'anisotropie γ de l' Yb^{175}Au en fonction du champ magnétique appliqué	113
III/	<u>Alignement de l'Ytterbium¹⁷⁵ dans l'éthylsulfate</u> .	114
IV/	<u>Orientation de l'Ytterbium dans l'argent</u>	116
	1°) L'implantation	116
	2°) Les résultats	116
V/	<u>Orientation de l'Yb^{175} dans le fer</u>	117
	1°) L'implantation	117
	2°) Analyse des résultats	118
	3°) Essai d'interprétation	120
VI/	<u>Orientation de l'Ytterbium dans le nickel</u>	122
	1°) L'implantation	122
	2°) Analyse des résultats	122
	3°) Discussion	124
VII/	<u>Conclusion</u>	124
CONCLUSION	:	126
REFERENCES	:	129
APPENDICE	:	133

E R R A T A

Page 3 - ligne 12

"interaction hyperfine quadrupolaire" est à remplacer par "interaction hyperfine électrostatique".

11 - équation I.18

" $\coth \frac{\beta}{2}$ " est à remplacer par " $\coth \frac{\beta}{2J}$ "

15 - équation II.5

l'expression de D_{MO}^{L*} est à remplacer par :

$$D_{MO}^{L*}(-\alpha, -\beta, -\gamma) = \sqrt{\frac{4\pi}{2L+1}} Y_{LM}(\beta, \alpha)$$

59 - équation V.7

" $B_I(\beta)$ " est à remplacer par " $B_I(I\beta)$ "

Rappelons que

$$B_I(I\beta) = \frac{2I+1}{2I} \coth\left(\frac{2I+1}{2}\beta\right) - \frac{1}{2I} \coth\left(\frac{\beta}{2}\right)$$

60 - équation V.8

l'expression B_2 est :

$$B_2 = \sqrt{\frac{5}{(2I+3)(2I-1)}} \left[2\sqrt{I(I+1)} - \frac{3\coth\frac{\beta}{2}}{\sqrt{I(I+1)}} IB_I(I\beta) \right]$$

77 - ligne 18

"la raie γ de 1,088 MeV" est à remplacer par
"la raie γ de 412 keV"

INTRODUCTION

L'étude des propriétés du rayonnement émis par le noyau d'une impureté radioactive placée dans un solide permet de mesurer les interactions hyperfines entre les moments électriques et magnétiques de ce noyau et les champs électromagnétiques auxquels il est soumis dans le cristal. Cette mesure est d'un grand intérêt pour le physicien du solide car elle lui fournit, indirectement, des renseignements sur les propriétés électroniques de l'atome radioactif et de la matrice qui l'entoure. Inversement si ces propriétés électroniques ont été préalablement déterminées par un autre procédé, on obtient des renseignements sur les moments du noyau ce qui donne au théoricien nucléaire un moyen de vérifier les modèles nucléaires de façon particulièrement précise.

Plusieurs méthodes peuvent être utilisées pour cette étude : effet Mössbauer, corrélations angulaires perturbées, orientation nucléaire. Le travail présenté ici comprend une partie théorique s'appliquant à ces deux dernières méthodes, et une partie expérimentale dans laquelle nous avons utilisé exclusivement l'orientation nucléaire. Quoique non spectroscopiques (on ne mesure pas l'énergie des photons émis), corrélations angulaires perturbées et orientation nucléaire présentent sur l'effet Mössbauer l'avantage de s'appliquer à un plus grand nombre de nucléides et de se prêter plus commodément à l'étude d'échantillons faiblement radioactifs, donc très dilués.

Elles se sont largement développées depuis peu grâce au perfectionnement de techniques existantes telles que celle des circuits électroniques (corrélations angulaires différentielles), à l'introduction dans ce domaine de techniques déjà utilisées par ailleurs comme la résonance magnétique nucléaire (qui permet alors d'observer, dans un échantillon, une concentration de noyaux moins élevée que sous sa forme classique), ou encore à l'apparition de techniques nouvelles comme l'implantation ionique, c'est à dire l'injection dans un cristal d'ions préalablement accélérés (on s'affranchit ainsi de la condition de solubilité des ions dans la matrice).

Sous l'effet de cet essor expérimental, des problèmes nouveaux sont apparus qui ont donné lieu récemment à de nombreuses études théoriques. Beaucoup de celles-ci concernent la distribution angulaire du rayonnement émis par une impureté soumise à des interactions hyperfines, et en particulier les effets des fluctuations de ces interactions ou encore ceux d'un champ de radiofréquence.

Le présent travail appartient à ce courant de recherches.

Dans la première partie (théorique), après un rappel des origines des interactions hyperfines (chapitre I), nous reprenons le problème de l'émission du rayonnement γ par un noyau au cours d'une cascade de deux γ successifs (chap. II) Nous y introduisons un formalisme qui couvre à la fois les expériences de corrélations angulaires perturbées et d'orientation nucléaire et facilite l'étude :

- des effets de relaxation (traités au chapitre III);
- de ceux d'un champ de radiofréquence (traités au chapitre IV).

Dans la deuxième partie (expérimentale) nous décrivons d'abord les techniques utilisées pour :

- la mesure de nos échantillons : l'orientation nucléaire (chapitre V);
- la préparation de ceux-ci : l'implantation ionique (chapitre VI).

Cette dernière méthode soulève des problèmes concernant en particulier le site de l'ion implanté et l'influence de ce site sur les interactions hyperfines. Pour résoudre ces questions, nous essayons dans ce même chapitre, de tirer des règles générales de deux exemples précis : l' Au^{198} $\underline{\text{Fe}}$ et le $\text{Ce}^{137\text{m}}$ $\underline{\text{Fe}}$.

Puis nous montrons (chapitre VII) comment le modèle élaboré dans la première partie pour traiter les problèmes de relaxation s'applique avec succès à des résultats expérimentaux. Ceux-ci proviennent :

- d'expériences faites par ailleurs sur
 - la relaxation du Co^{60} dans le fer et le nickel à des températures allant du 1/50°K à 1/300°K;
 - la relaxation du Zn^{65} dans le fer dans le même intervalle de température
- de nos propres expériences sur
 - la relaxation de l' $\text{Ag}^{109\text{m}}$ dans le fer et le nickel entre 1/30°K et 1/100°K.

On trouvera enfin (chapitre VIII) une étude d'alliages d'Ytterbium $\text{Yb}^{175}\underline{\text{Al}}$, $\text{Yb}^{175}\underline{\text{Ag}}$, $\text{Yb}^{175}\underline{\text{Fe}}$, $\text{Yb}^{175}\underline{\text{Ni}}$ conduisant à déterminer la valeur du moment nucléaire de l' Yb^{175} , à estimer son moment quadripolaire, et à formuler des hypothèses sur la structure électronique de l'Ytterbium dans ces composés.

C H A P I T R E I

L' HAMILTONIEN HYPERFIN

I - INTRODUCTION -

Considérons dans un cristal un atome, magnétique ou non, dont le noyau de spin I est caractérisé par son moment dipolaire magnétique $\vec{\mu}$ et par son moment quadrupolaire électrique Q . Ce noyau voit la dégénérescence $2I + 1$ de ses sous-niveaux levée par les interactions dites hyperfines de ses moments μ et Q avec l'ensemble des électrons du cristal. L'hamiltonien associé à ces interactions s'écrit ⁽¹⁾

$$\mathcal{H} = 2g_N \mu_N \mu_B \vec{I} \cdot \sum_i \left[\frac{\vec{\ell}_i}{r_i^3} - \left(\frac{\vec{s}_i}{r_i^3} - \frac{3\vec{r}_i (\vec{s}_i \cdot \vec{r}_i)}{r_i^5} \right) + \frac{8\pi}{3} \delta(r_i) \vec{s}_i \right] - \iint e^2 \frac{\rho_n(\vec{r}_n) \rho_e(\vec{r}_e)}{|\vec{r}_n - \vec{r}_e|} d_3 r_n d_3 r_e \quad (I.1)$$

où

- $\vec{r}_i$, $\vec{\ell}_i$ et $\vec{s}_i$ sont respectivement le rayon vecteur, le moment orbital et le spin du i ème électron par rapport au noyau pris comme origine.

- $\rho_n(\vec{r}_n)$ est la densité de charge nucléaire au point r_n et $\rho_e(\vec{r}_e)$ la densité de charge électronique au point r_e .

$\mathcal{H}$ est donc composé de deux termes, le premier étant l'interaction hyperfine magnétique et le second l'interaction hyperfine quadrupolaire.

L'interaction hyperfine magnétique comprend elle-même trois termes que l'on voit dans l'accolade et qui sont :

- a) l'interaction du spin du noyau avec le moment orbital de l'atome,
- b) l'interaction dipolaire du spin du noyau avec le spin de l'électron,
- c) l'interaction de contact.

Dans le présent chapitre, nous allons rappeler brièvement l'origine et la forme de ces interactions lorsque le noyau qui les subit appartient :

- soit à un ion libre
- soit à une impureté dans un cristal ionique ou métallique, dans le cas où cette impureté conserve un caractère ionique (ce cas étant essentiellement celui des terres rares).

Nous diviserons ces interactions en deux catégories :

- a) interaction avec les couches électroniques de l'ion lui-même
- b) interaction avec le reste du réseau.

Dans chacune de ces catégories nous distinguerons les interactions hyperfines magnétiques des interactions hyperfines quadrupolaires. Nous nous intéresserons principalement aux interactions hyperfines à 0°K qui sont celles mesurées dans les expériences d'orientation nucléaire. A la fin de ce chapitre, nous mentionnerons le cas d'une impureté non magnétique (sp) dans un métal ferromagnétique.

II - INTERACTION HYPERFINE D'UN ION LIBRE -

1°/ Interaction hyperfine magnétique.

1.1. Les interactions orbitale et dipolaire de spin.

Celles-ci s'écrivent à l'intérieur d'une configuration (L, S) ⁽¹⁾

$$\mathcal{H} = 2g_N \mu_N \mu_B \langle r^{-3} \rangle \left[\vec{L} \cdot \vec{I} + \xi L(L+1) (\vec{S} \cdot \vec{I}) - \frac{3}{2} \xi (\vec{L} \cdot \vec{S}) (\vec{L} \cdot \vec{I}) - \frac{3}{2} \xi (\vec{L} \cdot \vec{I}) (\vec{L} \cdot \vec{S}) \right] \quad (I.2)$$

$$\text{où } \xi = \frac{(2L+1) - 4S}{S(2L-1)(2L+3)(2L-1)}$$

Dans le cas des terres rares, où le couplage LS est important, les moments $\vec{L}$ et $\vec{S}$ précessent rapidement autour de leur résultante $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ et l'on n'observe que les composantes de ces moments suivant $\vec{J}$. On peut montrer que $\mathcal{H}$ prend alors la forme simple suivante ⁽¹⁾

$$\mathcal{H} = 2g_N \mu_N \mu_B \langle r^{-3} \rangle \langle J || N || J \rangle \vec{I} \cdot \vec{J} = A_J \vec{I} \cdot \vec{J}$$

où $\langle J || N || J \rangle$ est tabulé par Abragam et Bleaney.

Nous avons reporté sur le tableau (1) les valeurs de A_J des terres rares, données par ces derniers auteurs. Nous les avons transcrites en valeur de champ hyperfin en utilisant les valeurs des moments nucléaires les plus récentes et en posant $J = J_z$. La partie orbitale de A_J est de loin la plus importante.

TABEAU 1

T.R.	Ce ³⁺	¹⁴¹ Pr ³⁺	¹⁴³ Nd ³⁺	¹⁴⁵ Nd ³⁺	¹⁴⁷ Pm ³⁺	¹⁴⁷ Sm ³⁺	¹⁴⁹ Sm ³⁺
H_{eff} en Moe	1,9	3,336	4,280	4,330	3,929	3,444	3,426

¹⁵⁰ Th ³⁺	¹⁶¹ Dy ³⁺	¹⁶³ Dy ³⁺	¹⁶⁵ Ho ³⁺	¹⁶⁷ Er ³⁺	¹⁶⁹ Tm ³⁺	¹⁷¹ Yb ³⁺	¹⁷³ Yb ³⁺
3,140	5,986	5,951	7,458	7,638	6,705	4,132	4,120

N.B. Les champs du Ce³⁺ et du Tm³⁺ sont estimés.

1.2. L'interaction de contact.

L'interaction de contact provient uniquement des électrons s puisque ce sont les seuls dont la fonction d'onde ne s'annule pas à l'origine. Elle se met sous la forme :

$$\mathcal{H}_c = \left(\frac{16\pi}{3}\right) \mu_B \sum_i \vec{s}_i |\psi_{s_i}(0)|^2 \cdot g_N \mu_N \vec{I} \quad (1.3.)$$

Cette contribution à l'interaction hyperfine est d'autant plus grande par électron s que ceux-ci sont près du noyau. (2,5 Megagauss par électron 1s du Mn²⁺) Cependant elle devrait s'annuler exactement pour une couche s complète si l'on admet, comme on le fait habituellement, que tous les électrons d'une même sous-couche nl ont même fonction d'onde radiale. Or elle ne s'annule pas pour des ions comme Mn²⁺ dont toutes les couches s sont pleines mais qui possèdent par ailleurs des sous couches incomplètes non s. Ceci est dû aux interactions d'échange entre les électrons s et les électrons des sous-couches incomplètes, par exemple les couches d ou f. Celles-ci sont attractives pour les électrons s de même spin que celui de la couche incomplète et répulsives pour les électrons de spin opposés, ce qui a pour effet de polariser les couches s et de créer au niveau du noyau des densités différentes d'électrons s de spin ↑ et ↓, d'où apparition d'un terme de contact.

En résumé à l'intérieur d'une configuration LS, l'interaction de contact peut se mettre sous la forme

$$\mathcal{H}_c = U_{LS} \vec{S} \cdot g_N \mu_N \vec{I} \quad (I.4.)$$

Dans le cas d'une terre rare nous devons, comme précédemment, projeter $\vec{S}$ sur $\vec{J}$. Il vient ⁽¹⁾

$$\mathcal{H}_c = U_J (g_J - 1) \vec{J} \cdot g_N \mu_N \vec{I} \quad (I.5)$$

Si on admet que U_J est indépendant de J , on peut le déduire de la valeur expérimentale du champ hyperfin de l' Eu^{2+} ⁽¹⁾ :

$$U_J = - 83 \pm 13 \text{ koe} \quad (I.6.)$$

Cependant Freeman ⁽²⁾ a émis quelques doutes sur cette estimation

2°/ Interaction quadrupolaire.

L'interaction quadrupolaire à l'intérieur d'une configuration (LS) a pour expression ⁽¹⁾

$$W_e = \frac{-e^2 Q}{2I(2I-1)} \langle L || \alpha || L \rangle \langle r^{-3} \rangle_q \{ 3(\vec{L} \cdot \vec{I})^2 + \frac{3}{2}(\vec{L} \cdot \vec{I}) - L(L+1)I(I+1) \} \quad (I.7.)$$

Dans le cas d'un couplage LS important il suffit de remplacer $\vec{L}$ par $\vec{J}$ dans cette expression. Elle peut aussi s'écrire ⁽¹⁾

$$W_e = - \frac{3e^2 Q}{4I(2I-1)} \langle J || \alpha || J \rangle \langle r^{-3} \rangle_q \sum_{i=1}^5 J_i I_i \quad (I.8.)$$

$$\text{où } J_1 = \{ 3J_z^2 - J(J+1) \} / \sqrt{3}$$

$$J_2 = J_x^2 - J_y^2$$

$$J_3 = J_y J_z + J_z J_y$$

$$J_4 = J_z J_x + J_x J_z$$

$$J_5 = J_x J_y + J_y J_x$$

Les coefficients I_i sont définis par des équations similaires. $\langle L || \alpha || L \rangle$ et $\langle J || \alpha || J \rangle$ sont des constantes tabulées par Abragam et Bleaney ⁽¹⁾.

Notons que la quantité $\langle r^{-3} \rangle_q$ qui apparait dans cette expression est différente de celle qui apparait dans l'expression du champ hyperfin, mais lui est reliée par la relation ⁽¹⁾ :

$$\langle r^{-3} \rangle_q = (1 - R) \langle r^{-3} \rangle \quad (I.9)$$

R est un paramètre qui peut être positif ou négatif et qui tient compte de la distorsion des couches profondes par le gradient électrique dû aux électrons f, ce qui modifie sensiblement le gradient électrique vu par le noyau (facteur de Sternheimer intraatomique). Cette quantité est généralement petite $\sim 20\%$.

III - INTERACTIONS HYPERFINES D'UN ION DANS UN CRISTAL -

Nous allons envisager successivement les cas où le cristal est ionique, métallique non magnétique et enfin métallique ferromagnétique.

Nous supposons que :

- les ions étudiés sont suffisamment dilués dans le cristal pour ne pas interagir entre eux;

- le cristal est à 0°K et soumis à un champ magnétique extérieur dirigé suivant Oz.

1°/ Cas d'un cristal ionique.

L'interaction hyperfine magnétique est alors essentiellement due aux électrons de l'ion considéré lui-même. Par contre les ions du cristal peuvent apporter une contribution directe à l'interaction hyperfine quadrupolaire.

1.1. Interactions hyperfines dues aux électrons de l'ion lui-même.

1.1.1. Interactions hyperfines magnétiques.

Le champ cristallin va décomposer chaque niveau $|LSJ\rangle$ de l'ion libre en plusieurs multiplets. Or nous avons vu qu'à l'intérieur d'un tel niveau, les éléments de matrice du champ hyperfin sont proportionnels aux éléments de matrice de $\vec{J}$. On en déduit que la composante suivant Oz du champ hyperfin est égale à

$$(H_{\text{eff}})_{Oz} = (H_{\text{eff}})_{\text{ion libre}} \times \frac{\langle J_z \rangle}{J} \quad (I.10)$$

où $\langle J_z \rangle$ est la valeur de J_z dans le niveau fondamental du multiplet. Cette nouvelle valeur est donc au plus égale à celle de l'ion libre et le plus souvent inférieure. Plus précisément à l'intérieur d'un multiplet pouvant être décrit par un spin fictif $\vec{S}$ et pour lequel l'interaction Zeeman s'écrit $\mu_B \vec{H} \cdot g \cdot \vec{S}$, l'interaction hyperfine magnétique prend la forme $\vec{S} \cdot A \cdot \vec{I}$ où A et g sont des tenseurs de mêmes axes principaux reflétant la symétrie du cristal et reliés par les relations ⁽¹⁾

$$\frac{A_x}{g_x} = \frac{A_y}{g_y} = \frac{A_z}{g_z} = \frac{A_J}{g_J} \quad (I.11)$$

1.1.2. Interactions hyperfines quadrupolaires.

Il est facile de montrer que si le champ magnétique extérieur appliqué est parallèle à un axe cristallographique d'ordre égal à 3 ou plus, seul, dans l'expression de W_e , l'opérateur diagonal $(3J_z^2 - J(J+1))$ a des éléments de matrice non nuls à l'intérieur de chaque multiplet. On en déduit que l'interaction hyperfine quadrupolaire à laquelle est soumis le noyau a la symétrie axiale autour du champ magnétique appliqué et s'écrit ⁽¹⁾

$$W_e = - \frac{3e^2Q\langle r^{-3} \rangle}{4I(2I-1)} \langle J || \alpha || J \rangle \langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle (I_z^2 - \frac{1}{3} I(I+1)) \quad (I.12)$$

$\langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle$ représente la valeur de cet opérateur dans le niveau fondamental du multiplet.

Notons que si le champ magnétique est appliqué suivant un axe du cristal de symétrie inférieure à 3, il peut apparaître des termes transverses dans l'expression de l'énergie quadrupolaire hyperfine.

1.2. Interactions hyperfines dûes au reste du cristal.

1.2.1. Interaction magnétique.

Si le cristal possède une aimantation il contribue à l'interaction hyperfine par l'intermédiaire du champ dipolaire, créé par tous les dipôles de l'échantillon au noyau considéré, et du champ démagnétisant. Mais ces champs sont très faibles ($\sim 10^4$ oe) par rapport aux autres contributions.

1.2.2. Interaction quadrupolaire.

Lorsque le cristal n'est pas cubique, le champ cristallin lui-même interagit avec le moment quadrupolaire du noyau. Dans le cas d'une symétrie axiale l'hamiltonien correspondant s'écrit ⁽¹⁾

$$W_e = - \frac{3Q A_2^0}{I(2I-1)} (1 - \gamma_\infty) (I_z^2 - \frac{1}{3} I(I+1)) \quad (I.13)$$

A_2^0 est le coefficient de $3z^2 - r^2$ dans l'expression du champ cristallin et $(1 - \gamma_\infty)$ est le facteur de Sternheimer extraatomique qui rend compte de la modification du gradient quadrupolaire vu par le noyau sous l'effet de la déformation des orbitales électroniques pleines de l'atome. Ce facteur est grand dans le cas des terres rares (~ 80) et ne semble pas varier très sensiblement d'une terre rare à l'autre.

2°/ Cristal métallique non magnétique.

Les orbitales f des terres rares étant proches du noyau, on s'attend à ce qu'elles soient relativement peu perturbées par leur environnement. Effectivement on peut montrer que les niveaux atomiques f sont très peu élargis énergétiquement par les électrons de conduction; par conséquent, une description "ionique" de l'impureté de terre rare reste une bonne approximation (nous supposons que le niveau f n'est pas trop proche du niveau de Fermi). Dans cette description le métal interagit avec la terre rare par l'intermédiaire d'un champ cristallin (d'origine mal connue) et de ses électrons de conduction. De nombreuses expériences de mesures de susceptibilité ^(3, 4) et de R P E ⁽⁵⁾ ont confirmé ce point de vue. Par conséquent les interactions hyperfines provenant de l'ion lui-même sont essentiellement déterminées par la structure électronique de la terre rare dans le champ cristallin ^{comme} dans le cas d'un cristal ionique (cf Er Ag ⁽⁶⁾, Yb ¹⁷⁵ Au, Ce ^{137m} Au ⁽⁷⁾).

Il reste à connaître les effets des électrons de conduction sur le couplage hyperfin. Il semble raisonnable d'attribuer à ces effets toute différence entre le champ hyperfin de l'ion libre tel qu'il se déduit de mesures faites respectivement dans un métal et dans un cristal ionique. Or de telles déviations n'ont pas été décelées dans l'Er Ag ⁽⁶⁾ mais semblent avoir en revanche été observées dans l'Er Zr ⁽⁸⁾ ($H_{\text{eff}} = 8400$ koe au lieu de 7600). Dans ce dernier alliage, l'auteur suggère que le mécanisme responsable de la différence observée serait le suivant : la terre rare polarise les électrons de conduction dans son voisinage et cette polarisation donne naissance en retour à une interaction magnétique sur le noyau soit directement par contact, soit à travers une polarisation du coeur induite. Le problème est de plus compliqué par la présence d'un niveau 5d très proche du niveau 4f et qui peut former un état lié virtuel.

Enfin notons que très récemment Tao et al ⁽⁹⁾ ont observé le couplage hyperfin de l'Erbium et de l'Ytterbium dans l'or par résonance électronique et ont également pu mettre en évidence un effet dû aux électrons de conduction. Dans ce dernier cas les effets sont très faibles (~ 30 koe).

3°/ Cristal métallique ferromagnétique.

Dans un métal ferromagnétique, l'ion de terre rare est en outre soumis à un champ d'échange qui agit sur son spin $\vec{S} = \vec{J} - \vec{L}$. Nous admettrons que ce champ peut être décrit en première approximation comme un champ magnétique externe agissant sur S :

$$\mathcal{H}_e = 2\mu_B \vec{S} \cdot \vec{H}_{\text{éch}} = 2\mu_B (g_J - 1) \vec{J} \cdot \vec{H}_{\text{éch}} \quad (\text{I.14})$$

On s'attend à ce que ce champ soit proportionnel d'une part à l'aimantation de la matrice, d'autre part à une constante de couplage entre les spins de cette matrice et celui de la terre rare. Par exemple dans un modèle, extrêmement rudimentaire, où les électrons de conduction sont polarisés uniformément par échange sd avec les spins $\vec{S}$ de la matrice et interagissent avec la terre rare J également par échange il vient :

$$\chi^0 = 4 \rho(E_F) |U_{E_F}(R)|^2 (g_J - 1) \Omega J_{sf} J_{sd} \langle S_z \rangle_{\text{mat}} J_z \quad (\text{I.15})$$

où $\rho(E_F)$ et $|U_{E_F}(R)|$ sont respectivement la densité d'état et la fonction de Bloch au point Rau niveau de Fermi, Ω le volume atomique, $\langle S_z \rangle$ l'aimantation de la matrice et J_{sd} et J_{sf} les constantes d'échange sd et sf.

Négligeons pour l'instant le champ cristallin. Le champ d'échange va lever la dégénérescence $2J + 1$ de l'ion, la structure des niveaux correspondants étant de type Zeeman. Négligeant également la contribution des électrons de conduction au couplage hyperfin, on en déduit qu'à 0°K le champ hyperfin agissant sur le noyau et dû à l'ion lui-même est égal à celui de l'ion libre. Par ailleurs si les couplages d'échange entre spins de la matrice sont très supérieurs au couplage terre rare-matrice, H_{ech} est constant et la variation de $\langle J_z \rangle$ et de H_{eff} avec la température suivra une loi de Brillouin

$$H_{eff} = (H_{eff})_{\text{ion libre}} \times B_J \left(\frac{\mu_B (g_J - 1) J H_{ech}}{kT} \right) \quad (\text{I.16})$$

Ceci explique par exemple la variation du champ hyperfin du Thulium dans le fer ⁽¹⁰⁾ dont on déduit $H_{ech} = 2,5 \text{ Moe.}$

Ceci explique également en première approximation les résultats expérimentaux trouvés à la température ordinaire pour les terres rares dans le fer ⁽¹¹⁾ si l'on suppose que le couplage d'échange est antiferromagnétique. Le champ hyperfin dirigé suivant L, est donc positif pour la première partie de la série (du cérium au gadolinium) puisque L est opposé à S, et atteint un maximum pour le Nd^{3+} où L est maximum ($L = 6$). Après s'être à peu près annulé pour Gd^{3+} et Eu^{2+} qui sont des états S, il devient négatif dans la deuxième partie de la série puisque L est alors de même sens que S et atteint son minimum pour Er^{3+} ($L = 6$); enfin il est faiblement négatif pour Lu^{3+} qui est de nouveau un état S.

Le gradient quadrupolaire a un comportement analogue à celui du champ hyperfin. En effet nous avons vu que l'on a

$$V_{zz} = e \langle r^{-3} \rangle_q \langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle (J || \alpha || J) \quad (I.17)$$

V_{zz} est donc proportionnel à la moyenne thermique de l'opérateur $3J_z^2 - J(J+1)$ sur les états $|J, J_z\rangle$. Nous verrons au chapitre V qu'en présence seulement d'échange, cette moyenne a pour expression

$$\langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle = J \left[2(J+1) - 3 \coth \frac{\beta}{2} B_J(\beta) \right] \quad (I.18)$$

où
$$\beta = \frac{\mu_B (g_J - 1) J H_{ech}}{kT} \text{ et } B_J \text{ est la fonction de Brillouin}$$

Tenons compte maintenant du champ cristallin. Si la perturbation due à ce champ est faible par rapport à la perturbation due au champ d'échange, les résultats ci-dessus ne sont que très légèrement modifiés. Si au contraire le champ cristallin est prédominant, nous sommes ramenés au cas du métal non magnétique dans un champ magnétique extérieur. Si enfin les perturbations dues respectivement au champ cristallin et au champ d'échange sont de même ordre, on ne peut rien dire a priori. Il faut, pour traiter le problème, diagonaliser la matrice représentative du champ d'échange et du champ cristallin sur la base des états $|LSJ J_z\rangle$ et calculer la valeur moyenne de J_z^2 et de $3J_z^2 - J(J+1)$ dans les nouveaux états propres.

Les mesures expérimentales des champs hyperfins des terres rares dans le fer suggèrent qu'au moins dans la deuxième série les effets d'échange dominent les effets de champ cristallin ⁽¹⁰⁾. Dans la première série les effets pourraient être comparables ⁽¹²⁾.

Nous avons négligé jusqu'ici la contribution des électrons de conduction au champ hyperfin. On peut essayer de l'estimer en se basant sur la valeur expérimentale du champ hyperfin du gadolinium dans le fer qui est d'environ -200 koe. Le gadolinium étant dans un état S ce champ n'est dû qu'au terme de contact. Or la contribution provenant de la polarisation des couches internes est d'après (I.6) d'environ -300 koe. La contribution due à la polarisation des électrons de conduction semble être de $\sim +100$ koe, donc très faible. Mais cette estimation n'est que très grossière.

4°/ Impuretés non magnétiques dans un métal ferromagnétique.

Le noyau d'une impureté non magnétique (sp) dans un métal ferromagnétique (par ex. l'Ag dans le Fe) est soumis à une interaction hyperfine magnétique provenant de l'interaction de contact due à la polarisation des électrons du fer. Le signe et la grandeur de cette interaction ne dépendent que de l'importance relative du potentiel d'échange (responsable du ferromagnétisme) et du potentiel électrostatique de l'impureté créé par la différence de valence entre l'impureté et celle de la matrice (Daniel et Friedel (13), Campbell (14)).

Dans le cas du fer, si cette différence est supérieure à 3, le champ hyperfin est positif, la polarisation moyenne des électrons de conduction étant positive; il est négatif dans le cas contraire, l'interaction d'échange sd diminuant alors l'efficacité du potentiel attractif de l'impureté pour les électrons de spin positif. Ce modèle explique donc bien le changement de signe du champ hyperfin entre l'étain et l'antimoine.

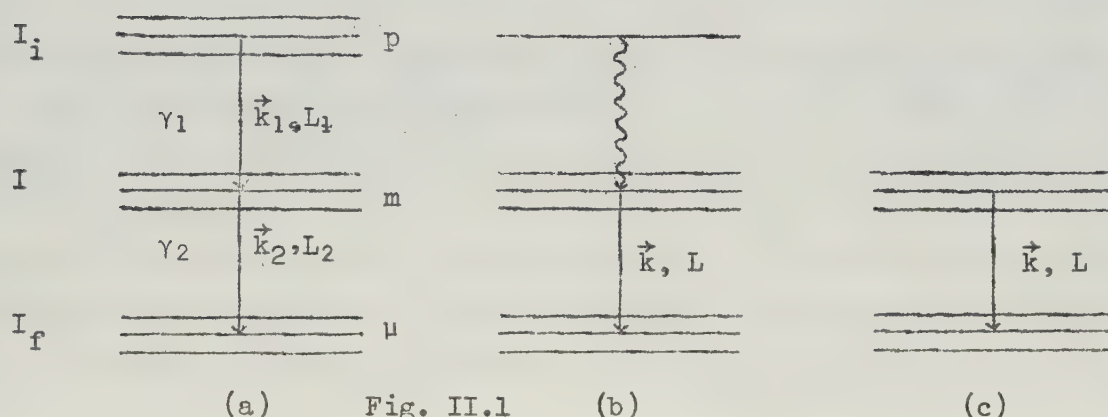
Enfin le noyau peut être également soumis à une interaction quadrupolaire provenant d'un gradient dû au réseau si celui-ci n'est pas cubique.

CHAPITRE II*

CARACTERISTIQUES GENERALES DU RAYONNEMENT EMIS AU COURS D'UNE CASCADE $\gamma_1 \rightarrow \gamma_2$

I - GENERALITES -

Considérons les schémas de désintégration nucléaire suivants :



Nous désignerons par A l'ordre de grandeur des interactions hyperfines dans les différents niveaux ($A \sim 0.01^\circ\text{K}$).

Le schéma (a) décrit une expérience de corrélation angulaire typique : on étudie la probabilité $W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t, t')$ pour qu'un photon γ_2 soit émis au temps t suivant la direction $\vec{k}_2$ après qu'un photon γ_1 ait été émis au temps t' suivant la direction $\vec{k}_1$. Les expériences ont très généralement lieu à des températures supérieures ou égales à 1°K , par conséquent $A/k_B T \ll 1$.

Les schémas (b) et (c) correspondent à des expériences d'orientation nucléaire. Dans la situation (b) on étudie la probabilité $\int_{-\infty}^t W(\vec{k}, t, t') dt'$ pour qu'un photon γ soit émis au temps t suivant la direction $\vec{k}$, un premier γ (ou une autre particule) ayant été émis à un instant antérieur t' peu de temps avant t . Dans la situation (c), on étudie la probabilité $W(\vec{k}, t)$ pour qu'un photon γ soit émis au temps t suivant la direction $\vec{k}$. Dans ces deux derniers cas (b) et (c), nous verrons que le rayonnement observé ne présente d'anisotropie mesurable que si $A/k_B T \gtrsim 1$.

* Les calculs que nous présentons dans les chapitres II, III et IV ont été faits en collaboration avec F. Hartmann-Boutron.

On note l'analogie entre les trois situations décrites par (a), (b), (c); (c) peut être considéré comme une expérience de type (a) dans laquelle on n'observe pas la première particule émise et (c) comme une expérience de type (b) dans laquelle la durée de vie de l'état intermédiaire tend vers l'infini. Dans tous les cas, les caractéristiques du rayonnement observé dépendent essentiellement des propriétés de l'état I et de l'évolution éventuelle du noyau pendant son séjour dans cet état.

Nous nous proposons dans ce chapitre d'établir des formules générales relatives à W et donnant (a), (b) et (c) comme cas particuliers. Pour étudier l'évolution du noyau dans l'état intermédiaire, nous développons la matrice densité en opérateurs tensoriels irréductibles suivant la méthode de Fano $\rho = \sum_{kq} \rho_k^{*q} T_k^q$. Ce formalisme permet de simplifier considérablement la présentation et l'interprétation des résultats. Nous verrons en particulier que les facteurs de perturbations introduits dans la théorie des corrélations angulaires peuvent être reliés très simplement à la variation temporelle de ρ .

II - CARACTERISTIQUES GENERALES DU RAYONNEMENT EMIS AU COURS D'UNE CASCADE $\gamma_1 - \gamma_2$.

1°/ Notations et hamiltonien de départ.

1.1. Niveaux nucléaires.

Nous considérons deux transitions γ successives entre trois niveaux nucléaires : I_i (sous niveaux p), I (sous niveaux m), I_f (sous-niveaux μ) dont les énergies sont, en l'absence de perturbations extérieures :

$$E(I_i) = \hbar(\Omega_1 + \Omega_2)$$

$$E(I) = \hbar\Omega_2 \quad (II.1)$$

$$E(I_f) = 0$$

valeurs propres d'un certain hamiltonien nucléaire $\mathcal{H}_N$. Les perturbations extérieures que nous considérons seront de deux types : statiques représentées par un hamiltonien $\mathcal{H}_Z$ (Zeeman ou quadrupolaire) et dynamiques représentées par un hamiltonien $\mathcal{H}_1(t)$ (radio fréquence ou relaxation). Notons que $[\mathcal{H}_N, \mathcal{H}_Z] = [\mathcal{H}_N, \mathcal{H}_1] = 0$.

Sous l'effet de $\mathcal{H}_Z$ les niveaux nucléaires se décomposent, de telle sorte que :

1.2. Rayonnement libre.

L'hamiltonien du rayonnement électromagnétique libre s'écrit, dans la représentation en ondes planes

$$\mathcal{H}_L = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \hbar \omega_{\mathbf{k}\lambda} n_{\mathbf{k}\lambda} \quad \text{avec } \omega_{\mathbf{k}\lambda} = ck \quad (\text{II.3})$$

(où λ représente les deux états possibles de polarisation circulaire transversales).

$\mathcal{H}_L$ commute avec $\mathcal{H}_N, \mathcal{H}_Z, \mathcal{H}_L$.

Nous poserons $\mathcal{H}_D = \mathcal{H}_N + \mathcal{H}_L$

1.3. Interaction entre le rayonnement électromagnétique et le noyau.

Nous adopterons la forme de Brink et Rose ⁽¹⁵⁾ (eq. 2.17' et 3.21)

$$\mathcal{H}_R = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \left(\frac{2\pi\hbar c}{L^3 k} \right)^{1/2} \left\{ H_a(\vec{k}, \epsilon_\lambda) a_{\mathbf{k}\lambda} + H_a^\dagger(\vec{k}, \epsilon_\lambda) a_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger \right\}$$

avec

$$H_a(\vec{k}, \epsilon_\lambda) = - \sum_{LMq} q^\pi T_{LM}^{<\pi>} D_{Mq}^L(R) \quad (\text{II.4})$$

où $q = \pm 1$ et les $T_{LM}^{<\pi>}$ sont, à des constantes multiplicatives près, les différents moments multipolaires électriques ($\pi = 0$) et magnétiques ($\pi = 1$) du noyau (B.R. eq 3.17 et 3.20).

Aussi bien ^{en} ce qui concerne les T_{LM} que les opérateurs de rotation D nous utiliserons les conventions d'Edmonds ⁽¹⁶⁾, que nous avons déjà employées antérieurement ^{(17)*}. Dans ces conditions

$$D_{Mq}^L(R) = D_{Mq}^L(-\alpha, -\beta, -\gamma) \quad (\text{II.5})$$

$$(\text{avec } D_{M0}^{L*}(-\alpha, -\beta, -\gamma) = Y_{lm}(\beta, \alpha))$$

où α, β, γ sont les angles d'Euler de la rotation qui amène un système d'axes Oxyz lié au noyau, à coïncider avec un système d'axe OXYZ lié à la direction $\vec{k}$ de propagation du photon ($OZ \parallel \vec{k}$, angles polaires de $\vec{k}$ par rapport à Oxyz : $\alpha = \phi$, $\beta = \theta$). Lorsqu'on ne s'intéresse qu'à des polarisations circulaires pures, le 3ème angle d'Euler γ disparaît de tous les résultats physiques et peut donc être pris égal à 0.

* Brink et Rose disent employer pour les rotations les conventions de Messiah, mais en ce qui concerne les T_{LM} leurs conventions ne sont ni celles de Messiah, ni celles d'Edmonds.

Les conventions que nous avons adoptées nous permettent de retrouver correctement un certain nombre de formules déjà connues antérieurement.

1.4. Représentation interaction.

Nous nous intéressons aux transitions γ d'émission spontanée entre les niveaux nucléaires $(I_i^{\gamma 1} \rightarrow I_f^{\gamma 2} \rightarrow I_f)$. Les états physiquement intéressants pour nous sont :

$$|p, 0 \text{ photon} \rangle$$

$$|m, 1 \text{ photon } k_1 \lambda_1 \text{ d'énergie voisine de } \omega_{\Omega_1} \rangle$$

$$|\mu, 1 \text{ photon } k_1 \lambda_1 \text{ avec } \omega_{k_1 \lambda_1} \sim \Omega_1, 1 \text{ photon } k_2 \lambda_2 \text{ avec } \omega_{k_2 \lambda_2} \sim \Omega_2 \rangle$$

Pour étudier le couplage entre ces états, il est commode de travailler en représentation interaction. Nous introduirons les opérateurs d'évolution:

$$U_D(t) \equiv U_D(t - t_0) = \exp \left[-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_D(t - t_0) \right] \quad \mathcal{H}_D = \mathcal{H}_N + \mathcal{H}_L$$

$$U_A(t) \equiv U_A(t, t_0) \text{ tel que} \quad (\text{II.6})$$

$$\frac{d}{dt} U_A(t, t_0) = \left[U_D^{-1}(t - t_0) (\mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_L(t)) \cdot U_D(t - t_0) \right] U_A(t, t_0)$$

$$U(t) \equiv U_D(t) U_A(t)$$

et nous définirons en représentation interaction

$$\tilde{\mathcal{H}}_R(t) = U^\dagger(t) \mathcal{H}_R U(t)$$

$$\tilde{\psi}(t) = U^\dagger(t) \psi(t)$$

$$= \sum_p b_p |p\rangle + \sum_{mk_1\lambda_1} b_{m,k_1\lambda_1} |m, k_1\lambda_1\rangle \quad (\text{II.7.})$$

$$+ \sum_{\mu k_1\lambda_1 k_2\lambda_2} b_{\mu k_1\lambda_1 k_2\lambda_2} |\mu, k_1\lambda_1, k_2\lambda_2\rangle$$

$\tilde{\psi}(t)$ est solution de l'équation

$$i\hbar \frac{\partial \tilde{\psi}}{\partial t} = \tilde{\mathcal{H}}_R \tilde{\psi}$$

2°/ Equations couplées. Effets de l'émission spontanée sur le niveau intermédiaire.

Comme dans (18), il est aisé d'établir que les équations reliant entre eux les b sont de la forme

$$ib_p^0 = \frac{1}{\mathcal{H}} \sum_{m,k_1\lambda_1} \langle p | \tilde{\mathcal{H}}_R(t) | m, k_1\lambda_1 \rangle b_{m,k_1\lambda_1} \quad (\text{II.8})$$

$$ib_{m,k_1\lambda_1}^0 = \frac{1}{\mathcal{H}} \sum_p \langle m, k_1\lambda_1 | \tilde{\mathcal{H}}_R(t) | p \rangle b_p \quad (\text{II.9})$$

$$+ \frac{1}{\mathcal{H}} \sum_{\mu, k_2\lambda_2} \langle m, k_1\lambda_1 | \tilde{\mathcal{H}}_R(t) | \mu, k_1\lambda_1, k_2\lambda_2 \rangle b_{\mu, k_1\lambda_1, k_2\lambda_2}$$

$$ib_{\mu, k_1\lambda_1, k_2\lambda_2}^0 = \frac{1}{\mathcal{H}} \sum_m \langle \mu, k_1\lambda_1, k_2\lambda_2 | \tilde{\mathcal{H}}_R(t) | m, k_1\lambda_1 \rangle b_{m, k_1\lambda_1} \quad (\text{II.10})$$

Nous allons maintenant faire l'hypothèse simplificatrice que les transitions γ_1 et γ_2 ont un caractère multipolaire bien défini (L_1 pour γ_1 , L_2 pour γ_2). Nous évitons ainsi d'avoir à introduire des coefficients de mélange ("mixing ratios") dont les signes dépendent de façon critique du choix de phase adoptée pour les T_{LM} de L différents et qui sont à l'origine des conventions subtiles de Brink et Rose* (eq. 2.33', 3.18, 3.19 etc.)

Avant de faire le calcul complet de la cascade $\gamma_1 - \gamma_2$, il est bon d'éliminer la sommation sur $k_2\lambda_2$ qui figure dans (II.9) et représente les effets de l'émission spontanée sur le niveau I. On utilise à cette fin la méthode de la référence (19) p. 544; nous allons l'exposer en détail sur le cas simple considéré ici; en effet un raisonnement très analogue intervient au cours du calcul de la cascade, qui met en jeu des expressions d'écriture beaucoup plus compliquée et ceci nous dispensera d'avoir à refaire la discussion dans ce cas. Intégrons (II.10) et transportons le résultat dans (II.9); il apparaît un terme:

$$- \frac{i}{\mathcal{H}^2} \sum_{m'} \int_{-\infty}^t dt' \langle m, k_1\lambda_1 | \tilde{\mathcal{H}}_R(t) | \mu, k_1\lambda_1, k_2\lambda_2 \rangle \langle \mu, k_1\lambda_1, k_2\lambda_2 | \tilde{\mathcal{H}}_R(t') | m', k_1\lambda_1 \rangle b_{m', k_1\lambda_1}(t')$$

soit en explicitant $\tilde{\mathcal{H}}_R$ et la somme sur les photons $\vec{k}_2\lambda_2$ (énergie, polarisation, angles)

* Notons que les termes de mélange disparaissent des formules lorsqu'on intègre sur la direction d'émission de la particule.

$$= \frac{i}{M^2} \frac{2\pi M c}{L^3} \times \frac{L^3}{8\pi^3} \int \frac{k_2^2 dk_2}{k_2} \sin \theta_{k_2} d\theta_{k_2} d\phi_{k_2} \quad (\text{II.11})$$

$$\times \int_{-\infty}^t dt' e^{i(\Omega_2 - ck_2)(t-t')} \sum_{\substack{\mu m' q = \pm 1 \\ M_2 M_2'}} \langle \mu | U_A^+(t) q^\pi T_{L_2 M_2}^{<\pi>} D_{M_2 q_2}^{L_2} (-\phi_2, -\theta_2, 0) U_A(t) | \mu \rangle \\ \times \langle \mu | U_A^+(t') q^\pi T_{L_2 M_2}^{<\pi>+} D_{M_2 q_2}^{L_2 *} (-\phi_2, -\theta_2, 0) U_A(t') | \mu \rangle \times b_{m', k_1 \lambda_1}(t')$$

Après sommation ceci devient :

$$= i \times \frac{2c}{\pi M(2L+1)} \int \frac{k_2^2 dk_2}{k_2} \int_{-\infty}^t dt' e^{i(\Omega_2 - ck_2)(t-t')} \sum_{\mu m' M_2} \langle \mu | U_A^+(t) T_{L_2 M_2}^{<\pi>} U_A(t) | \mu \rangle \\ \times \langle \mu | U_A^+(t') T_{L_2 M_2}^{<\pi>+} U_A(t') | \mu \rangle b_{m', k_1 \lambda_1}(t') \quad (\text{II.12})$$

Il faut maintenant montrer que, sous condition d'intégrer (comme nous le faisons ici) sur l'énergie du photon émis ($\int dk_2$), il est possible, dans l'intégrale par rapport à t' , de remplacer t' par t dans $U_A(t')$ et $b_{m'}(t')$.

Posons $t' = t - \tau$, la quantité

$$\sum_{\mu m M} \langle \mu | U_A^+(t) T_{LM}^{<\pi>} | \mu \rangle \langle \mu | U_A^+(t-\tau) T_{LM}^{<\pi>+} U_A(t-\tau) | m' \rangle b_{m', k_1 \lambda_1}(t-\tau) \quad (\text{II.13})$$

est une fonction de τ dont la variation temporelle est très lente par rapport aux périodes "optiques" (c.à. d. Ω_2^{-1}). Ecrivons donc schématiquement cette fonction sous la forme

$$\sum_{\rho} a_{\rho} e^{i\rho\tau} \quad (\rho \text{ réel ou complexe})$$

L'intégrale double sur k et t' se présente sous la forme d'une somme de termes de type :

$$\int_0^{\infty} k_2 dk_2 a_{\rho} \int_0^{\infty} d\tau \exp [(i\Omega_2 - ck_2)\tau] \exp [i\rho\tau] \\ = \int_0^{\infty} k_2 dk_2 a_{\rho} \left[\pi \delta(\Omega_2 - ck_2 + \rho) + i \text{PP} \left(\frac{1}{\Omega_2 - ck_2 + \rho} \right) \right]$$

ρ est très petit devant Ω_2 ($\rho/\Omega_2 \sim 10^{-10}$); lors du calcul de l'intégrale sur k il peut donc être négligé dans l'argument de la fonction δ et de la partie principale. Ceci revient à négliger τ dans (II.13) et donc à remplacer t' par t dans (II.12). Tous calculs faits (II.12) se réduit alors à

$$\begin{aligned} & -i \left(\frac{\Gamma_2}{2} + i \Delta E_2 \right) b_{m,k_1\lambda_1}(t) \\ \text{avec}^* \quad \frac{\Gamma_2}{2} &= \frac{2\Omega_2}{\pi c} \frac{|\langle I || T_{L_2} || I_f \rangle|^2}{(2L_2+1)(2I+1)} \Omega_2 \end{aligned} \quad (\text{II.14})$$

$$\Delta E_2 = \frac{2c}{\pi \hbar} \int k_2 dk_2 \frac{|\langle I || T_{L_2} || I_f \rangle|^2 k_2}{(2L_2+1)(2I+1)} \text{PP} \left(\frac{1}{\Omega_2 - ck_2} \right)$$

Γ_2 et ΔE_2 caractérisent l'amortissement (durée de vie) et la self-énergie de l'état I , identiques pour tous les sous niveaux m . La self-énergie (infinie) est généralement incorporée dans l'énergie non perturbée du niveau I .

Compte tenu de ces résultats le système d'équations (II.8, 9, 10) peut être remplacé par

$$ib_p^O = \frac{1}{\hbar} \sum_{m,k_1\lambda_1} \langle p | \tilde{\mathcal{H}}_R(t) | m,k_1\lambda_1 \rangle b_{m,k_1\lambda_1} \quad (\text{II.15})$$

$$ib_{m,k_1\lambda_1}^O = \frac{1}{\hbar} \sum_I \langle m,k_1\lambda_1 | \tilde{\mathcal{H}}_R(t) | p \rangle b_p - i \frac{\Gamma_2}{2} b_{m,k_1\lambda_1} \quad (\text{II.16})$$

$$ib_{\mu,k_1\lambda_1,k_2\lambda_2}^O = \frac{1}{\hbar} \sum_m \langle \mu,k_1\lambda_1, k_2\lambda_2 | \tilde{\mathcal{H}}_R(t) | m,k_1\lambda_1 \rangle b_{m,k_1\lambda_1} \quad (\text{II.17})$$

qui nous servira de point de départ pour le calcul de la cascade.

3°/ Cascade $\gamma_1 \rightarrow \gamma_2$: formules générales.

Intégrons (II.16) par la méthode de variations des constantes

$$b_{m,k_1\lambda_1} = -\frac{i}{\hbar} \sum_p \int_{-\infty}^t dt' e^{-\Gamma_2(t-t')} \langle m,k_1\lambda_1 | \tilde{\mathcal{H}}_R(t') | p \rangle b_p(t')$$

* Les éléments de matrice de Brink et Rose sont plus grands que ceux d'Edmonds d'un facteur $\sqrt{2I+1}$. Par ailleurs les $\langle || T_{L_2} || \rangle$ dépendent de l'énergie du photon (Brink et Rose, eq. 3.29 et 3.30).

Transportons dans (II.17); réintégrons (II.17) par la méthode de variations des constantes et formons $\frac{d}{dt} (|b_{\mu k_1 \lambda_1 k_2 \lambda_2}|^2)$. Expérimentalement ce que nous observons c'est le rayonnement γ_1, γ_2 émis dans certains angles solides $d\psi_1, d\psi_2$ abstraction faite de sa fréquence et de sa polarisation. Nous devons donc sommer sur μ, λ_1 et λ_2 et intégrer sur les modules de $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$. Il vient alors :

$$\begin{aligned} & \frac{d}{dt} \left\{ \sum_{\substack{\mu \\ \lambda_1, |k_1| \\ \lambda_2, |k_2|}} |b_{\mu, k_1 \lambda_1, k_2 \lambda_2}|^2 \right\} d\psi_1 d\psi_2 \equiv L(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 d\psi_2 \\ & = d\psi_1 d\psi_2 \times \frac{1}{\mathcal{V}^4} \sum_{\substack{mm' \\ pp' \\ \lambda_1 \lambda_2}} \int_0^\infty \int_0^\infty dk_1 dk_2 \frac{(2\pi\hbar c)^4}{(\delta\pi^3)^2} k_1 k_2 \\ & \times \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^t dt'' \int_{-\infty}^t dt''' \exp\left[-\frac{\Gamma_2}{2}(t-t')\right] \exp\left[-\frac{\Gamma_2}{2}(t''-t''')\right] \exp\left[i(ck_2 - \Omega_2)(t-t'')\right] \\ & \quad \times \exp\left[i(ck_1 - \Omega_1)(t' - t''')\right] \\ & \times \langle \mu, k_1 \lambda_1, k_2 \lambda_2 | U_A^+(t) H_a U_A(t) | m, k_1 \lambda_1 \rangle \langle m, k_1 \lambda_1 | U_A^+(t') H_a U_A(t') | p \rangle b_p(t') b_{p'}^*(t''') \\ & \times \langle p' | U_A^+(t''') H_a U_A(t''') | m', k_1 \lambda_1 \rangle \langle m', k_1 \lambda_1 | U_A^+(t'') H_a U_A(t'') | \mu, k_1 \lambda_1, k_2 \lambda_2 \rangle + c.c \end{aligned} \quad (II.18)$$

(où H_a est défini par l'équation (II.4))

Puisque l'on intègre sur l'énergie des photons, un raisonnement analogue à celui du paragraphe précédent conduit à remplacer t'' par t et t''' par t' . Ceci fait, on peut expliciter l'expression de H_a et relier les éléments de matrice réduits qui apparaissent aux amortissements radiatifs Γ_1, Γ_2 et self-énergies $\Delta E_1, \Delta E_2$ des deux niveaux excités I_1 et I . D'où :

$$\begin{aligned}
 L(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 d\psi_2 &= d\psi_1 d\psi_2 \left(\frac{2L_1+1}{8\pi} \right) \left(\frac{2L_2+1}{8\pi} \right) \times \Gamma_1 \times \left(\frac{\Gamma_2}{2} + i\Delta E_2 \right) \int_{-\infty}^t dt' e^{-\Gamma_2(t-t')} \\
 &\times \sum_{\substack{M_1 M_1' \\ M_2 M_2' \\ q_1 q_2}} \sum_{\substack{mm' m'' m''' \\ pp' \\ \mu}} D_{M_2 q_2}^{L_2*}(-\phi_2, -\theta_2, 0) D_{M_2' q_2}^{L_2}(-\phi_2, -\theta_2, 0) D_{M_1 q_1}^{L_1*}(-\phi_1, -\theta_1, 0) D_{M_1' q_1}^{L_1}(-\phi_1, -\theta_1, 0) \\
 &\times \langle L_2 M_2' I_f \mu | L_2 I_f Im''' \rangle \langle L_2 I_f Im' | L_2 M_2 I_f \mu \rangle \\
 &\times \langle L_1 I I_i p | L_1 M_1 Im' \rangle \sigma_{pp'}^{I_i}(t') \langle L_1 M_1' Im'' | L_1 I I_i p' \rangle \\
 &\times \langle m | U_A(t, t') | m' \rangle \langle m'' | U_A^+(t, t') | m''' \rangle + c.c
 \end{aligned}
 \tag{II.19}$$

où l'on a posé $U_A(t, t') = U_A(t) U_A^+(t')$ et où σ^{I_i} est la matrice densité du niveau initial en représentation normale (de façon générale on désignera par σ la matrice densité en représentation normale, ρ la matrice densité en représentation interaction)

On peut effectuer la sommation sur $M_2 M_2'$, q_2 et μ

$$\begin{aligned}
 &\sum_{\substack{M_2 M_2' \\ q_2 \mu}} D_{M_2 q_2}^{L_2*}(-\phi_2, -\theta_2, 0) D_{M_2' q_2}^{L_2}(-\phi_2, -\theta_2, 0) \langle L_2 M_2' I_f \mu | L I_f Im'' \rangle \langle L I_f Im' | L_2 M_2 I_f \mu \rangle \\
 &= \sum_{k_2 N_2} A_2^I(k_2) \frac{1}{\sqrt{2k_2+1}} Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \phi_2) (-1)^{I+m} (2k_2+1) \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m'' & -m & N_2 \end{pmatrix} \\
 &\tag{II.20}
 \end{aligned}$$

$$\text{avec } A_2^I(k_2) = \sum_{q_2=\pm 1} (-1)^{q_2+I-I_f} (2I+1) \sqrt{4\pi} \begin{pmatrix} L_2 & L_2 & k_2 \\ -q_2 q_2 & 0 \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} I & k & I \\ L_2 & I_f & L_2 \end{Bmatrix}$$

(il est aisé de vérifier que $A_2^I(k_2)$ n'est différent de 0 que si k_2 est pair)

En reportant (II.20) dans (II.19), on obtient l'expression générale qui servira de point de départ à la suite des calculs.

$$\begin{aligned}
 L(\psi_1 \psi_2) d\psi_1 d\psi_2 &= d\psi_1 d\psi_2 \left(\frac{2L_1+1}{8\pi} \right) \left(\frac{2L_2+1}{8\pi} \right) \Gamma_1 \frac{\Gamma_2}{2} \int_{-\infty}^t dt' e^{-\Gamma_2(t-t')} \\
 &\times \sum_{\substack{M_1 M_1' \\ q_1}} \times \sum_{\substack{mm' m'' m''' \\ pp' \\ \mu}} D_{M_1 q_1}^{L_1*}(-\phi_1, -\theta_1, 0) D_{M_1' q_1}^{L_1}(-\phi_1, -\theta_1, 0) \\
 &\times \langle m | U_A(t, t') | m' \rangle \langle L_1 M_1 Im' | L_1 I I_i p \rangle \sigma_{pp'}^{I_i}(t') \langle L_1 I I_i p' | L_1 M_1' Im'' \rangle \langle m'' | U_A^+(t, t') | m''' \rangle \\
 &\times \sum_{k_2 N_2} A_2^I(k_2) \frac{1}{\sqrt{2k_2+1}} Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \phi_2) (-1)^{I+m} (2k_2+1) \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m'' & -m & N_2 \end{pmatrix} + c.c
 \end{aligned}
 \tag{II.21}$$

En passant de (II.19) à (II.21) nous avons laissé tomber le terme en ΔE_2 dont on peut vérifier qu'il disparaît effectivement à la fin des calculs.

Il est possible de donner une interprétation physique simple du deuxième membre de l'équation (II.21).

$\sigma_{pp'}(t')$ est un élément de la matrice densité à l'instant t' des noyaux se trouvant dans l'état I_i

$$\left[\sigma_{m'm''}(t') \right]_{in} = \sum_{\substack{M_1 M_1' \\ pp' q_1}} D_{M_1 q_1}^{L_1*}(-\phi_1, -\theta_1, 0) D_{M_1' q_1}^{L_1}(-\phi_1, -\theta_1, 0) \times \frac{2L_1+1}{8\pi} d\psi_1 \quad (II.22)$$

$$\times \langle L_1 M_1 I m' | L_1 I I_i p \rangle \sigma_{pp'}(t') \langle L_1 I I_i p' | L_1 M_1' I m'' \rangle$$

représente la matrice densité des noyaux ayant effectués à l'instant t' la transition $I_i \rightarrow I$ par émission d'un photon $\vec{k}_1$ dans l'angle solide $d\psi_1(\theta_1, \phi_1)$, immédiatement après l'arrivée dans I de ces noyaux

$$\left[\sigma_{mm''}(t, t') \right]_{em} = \sum_{m' m''} \langle m | U_A(t, t') | m' \rangle \left[\sigma_{m' m''}(t') \right]_{in} \langle m'' | U_A^\dagger(t, t') | m'' \rangle \quad (II.23)$$

représente ce qu'est devenue à l'instant t la matrice densité de ces noyaux sous l'effet des diverses perturbations agissant dans l'état I . Enfin

$$L(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 d\psi_2 = d\psi_2 \Gamma_1 \times \frac{2L_2+1}{8\pi} \frac{\Gamma_2}{2} \int_{-\infty}^t e^{-\Gamma_2(t-t')} dt' \\ \times \sum_{k_2 N_2} A_2^2(k_2) (2k_2+1) \frac{Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \phi_2)}{\sqrt{2k_2+1}} (-1)^{I+m} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m'' & -m & N_2 \end{pmatrix} \left[\sigma_{mm''}(t, t') \right]_{em}$$

représente le nombre de noyaux (par seconde) arrivant à l'instant t dans le fondamental I_f par émission à cet instant d'un photon $\vec{k}_2$ dans $d\psi_2$ à partir de I . On note que $L(\psi_1, \psi_2)$ ne dépend que de la matrice densité des noyaux émetteurs à l'instant t . Mais cette matrice n'est pas la même pour tous les noyaux dans l'état I puisqu'elle dépend de t' , temps auquel a été émis le premier photon $\vec{k}_1$.

4°/ Applications : corrélations angulaires perturbées.

On obtient les formules classiques pour les corrélations angulaires perturbées en faisant, pour la matrice densité du niveau initial I_i , une hypothèse de "très hautes températures".

$$\sigma_{pp'}(t') = \delta_{pp'} \times \text{const} = C \delta_{pp'} \quad (\text{II.25})$$

(en pratique, les fréquences hyperfines étant au plus de l'ordre de quelques milliers de MHz, ceci nous limite à des températures supérieures à 1°K)

Dans l'équation (II.21), il est alors possible d'effectuer la sommation sur p

$$\begin{aligned} & \sum_{\substack{M_1 M_1' \\ p}} D_{M_1 q_1}^{L_1*}(-\phi_1, \theta_1, 0) D_{M_1' q_1}^{L_1}(-\phi_1, -\theta_1, 0) \langle L_1 I I_i \rangle_p \langle L_1 M_1 I m' \rangle \langle L_1 M_1' I m'' \rangle \langle L_1 I I_i \rangle_p \\ &= \sum_{k_1 N_1} \frac{2I_i+1}{2I+1} A_1'(k_1) \frac{1}{\sqrt{2k_1+1}} Y_{k_1}^{N_1*}(\theta_1, \phi_1) (-1)^{I+m'} (2k_1+1) \begin{Bmatrix} I & I & k_1 \\ m'' & -m' & N_1 \end{Bmatrix} \end{aligned} \quad (\text{II.26})$$

où $A_1'(k_1)$ est défini de façon analogue à $A_2'(k_2)$ ($L_2 \rightarrow L_1$, $I_f \rightarrow I_i$)

$$A_1'(k_1) = \sum_{q_1=\pm 1} (-1)^{q_1+I-I_i} (2I+1) \sqrt{4\pi} \begin{Bmatrix} L_1 & L_1 & k_1 \\ -q_1 & q_1 & 0 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} I & k_1 & I \\ L_1 & I_i & L_1 \end{Bmatrix}$$

Finalement en posant

$$A_1(k_1) = \frac{2I_i+1}{2I+1} \frac{2L_1+1}{8\pi} \sqrt{2k_1+1} A_1'(k_1) \Gamma_1 \quad (\text{II.27})$$

$$A_2(k_2) = \frac{2L_2+1}{8\pi} \Gamma_2 \sqrt{2k_2+1} A_2'(k_2)$$

il vient

$$\begin{aligned} & L(\psi_1, \psi_2)_{\text{FAC}} d\psi_1 d\psi_2 \\ &= C d\psi_1 d\psi_2 \int_{-\infty}^t e^{-\Gamma_2(t-t')} dt' \\ &\times \sum_{\substack{k_1 k_2 \\ N_1 N_2}} A_1(k_1) A_2(k_2) \frac{Y_{k_1}^{N_1*}(\theta_1, \phi_1)}{\sqrt{2k_1+1}} \frac{Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \phi_2)}{\sqrt{2k_2+1}} G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t, t') \end{aligned} \quad (\text{II.28})$$

avec

$$G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t, t') = \sum_{\substack{mm' \\ m''m'''}} (-1)^{2I+m+m'} \langle m | U_A(t, t') | m' \rangle \langle m'' | U_A(t, t') | m''' \rangle^* \\ \times \sqrt{2k_1+1} \sqrt{2k_2+1} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m''' & -m & N_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m'' & -m' & N_1 \end{pmatrix}$$

$G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t, t')$ n'est pas autre chose que le facteur de perturbation utilisé dans la théorie des corrélations angulaires perturbées. On retrouve avec $L(\psi_1 \psi_2)$ $d\psi_1 d\psi_2$ l'expression de la corrélation intégrale, et avec sa dérivée par rapport au temps prise pour $\Gamma = 0$, celle de la corrélation différentielle (19).

$$W(k_1, k_2, t) = \sum_{\substack{k_1 k_2 \\ N_1 N_2}} A_1(k_1) A_2(k_2) \frac{Y_{k_1}^{N_1}(\theta_1 \phi_1)}{\sqrt{2k_1+1}} \frac{Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2 \phi_2)}{\sqrt{2k_2+1}} G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t, t') \quad (\text{II.29})$$

A titre de vérification élémentaire de l'équation (II.28), on remarque que le nombre total de noyaux arrivant par seconde dans l'état fondamental I_f est égal à

$$\int L_{\text{PAC}}(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 d\psi_2$$

En utilisant le fait que

$$A_1^f(k_1=0) = \frac{2\sqrt{4\pi} \sqrt{2I+1}}{(2L_2+1)} \times (-1)^{2I} \text{ et } A_2^f(k_2=0) = \frac{2\sqrt{4\pi} \sqrt{2I+1}}{(2L_1+1)} (-1)^{2I}$$

il est aisé de montrer que

$$\int L_{\text{PAC}}(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 d\psi_2 = \Gamma_1 (2I_1+1) C$$

comme on pouvait s'y attendre (conservation du nombre de noyaux au cours des désexcitations radiatives)

5°/ Orientation nucléaire.

Dans ces expériences, on n'observe que la direction du deuxième photon; par contre on opère à très basse température ($< 1^\circ\text{K}$). Dans l'équation (II.21) il faudra donc intégrer sur $\theta_1 \phi_1$, mais on ne fera aucune hypothèse sur $\sigma_{pp'}$.

$$d\psi_2 \int L(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 = d\psi_2 \frac{\Gamma_1 \Gamma_2}{2} \left(\frac{2L_2+1}{8\pi} \right) \int_{-\infty}^t dt' e^{-\Gamma_2(t-t')} \sum_{k_2 N_2} A_2^I(k_2) \frac{1}{\sqrt{2k_2+1}} Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2 \phi_2) \quad (II.30)$$

$$\times \sum_{\substack{M_1 P \\ m, m', m'', m'''}} (-1)^{I+m} \times (2k_2+1) \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m''' & -m & N_2 \end{pmatrix}$$

$$\times \langle m | U_A(t, t') | m' \rangle \langle L_1 M_1 I m' | L_1 II_{i,p} \rangle \sigma_{pp}, (t') \langle L_1 II_{i,p} | L_1 M_1 I m'' \rangle \langle m'' | U_A^+(t, t') | m''' \rangle$$

+ c.c

L'interprétation physique d'une expression de ce genre a déjà été donnée dans le §II.3. On prévoit ici une simplification supplémentaire du fait que l'émission spontanée du 1er photon présente la symétrie sphérique. Pour bénéficier de cette simplification, il est intéressant de faire un développement de la matrice densité en opérateurs tensoriels irréductibles. Ce sera l'objet du paragraphe suivant

REMARQUE.

La formule (II.30) a été établie en supposant que la première particule émise au cours de la cascade était un photon. Si la première transition était une transition β ou α ou une capture K, on obtiendrait des formules identiques à un coefficient numérique près ⁽²⁰⁾. L'ensemble de ces résultats justifie la méthode de calcul que nous adoptons dans l'interprétation des résultats obtenus sur les systèmes Pd^{109}_{Fe} , Cd^{109}_{Fe} et Cd^{109}_{Ni} (Chap. VII), où les premières transitions sont respectivement une transition β et une capture K.

III - UTILISATION DU FORMALISME DES OPERATEURS TENSORIELS IRREDUCTIBLES ^(21, 22, 23).

1°/ Notations.

A l'intérieur de chaque niveau nucléaire, nous développons la matrice densité suivant une base d'opérateurs tensoriels irréductibles normés T_k^q adaptée à ce niveau. Nous donnerons les formules pour le niveau intermédiaire I. Par définition

$$\langle I m' | T_k^q | I m \rangle = \sqrt{\frac{2k+1}{2I+1}} \langle I m k q | I m' \rangle \quad (II.31)$$

$$T_k^{q+} = (-1)^q T_k^{-q} \quad (II.32)$$

$$\text{Trace } \{ T_k^{q+} T_{k'}^q \} = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \quad (II.33)$$

Le développement de la matrice densité s'écrit :

$$\sigma = \sum_{kq} \sigma_{kq}^* T_k^q = \sum_{kq} \sigma_{kq} T_k^{q+} \quad (k < 2I) \quad (\text{II.34})$$

$$\sigma_{kq} = \text{Trace} \{ \sigma T_k^q \} = \langle T_k^q \rangle$$

2°/ Relation entre l'évolution temporelle des σ_k^q et les facteurs de perturbation des corrélations angulaires.

En fonction de l'opérateur d'évolution U_A , la relation entre la matrice densité du niveau I à l'instant t' et la matrice densité du même niveau à l'instant t est :

$$\sigma(t) = U_A(t, t') \sigma(t') U_A^+(t, t')$$

si l'on développe σ en opérateurs tensoriels irréductibles, il est aisé de montrer par identification que

$$\sigma_{kq}^*(t) = \sum_{k'q'} G_{k'k}^{q'q}(t, t') \sigma_{k'q'}^*(t') \quad (\text{II.35})$$

En présence de phénomènes dissipatifs (relaxation), cette relation permet d'obtenir les facteurs de perturbation par intégration de l'équation d'évolution de la matrice densité. En l'absence de relaxation, il est souvent plus simple (et sans danger) de calculer directement les G à partir de la relation, également facile à établir :

$$G_{k'k}^{q'q}(t, t') = \text{Trace} \{ T_k^{q+} U_A(t, t') T_{k'}^{q'} U_A^+(t, t') \} \quad (\text{II.36})$$

(noter que cette trace ne contient pas la matrice densité)

3°/ Couplage entre les σ_k^q des différents niveaux au cours des processus d'émission spontanée électromagnétique.

D'après (II.22) la matrice densité des noyaux arrivant dans l'état I juste après émission spontanée d'un photon $\vec{k}_1$ de direction quelconque, est reliée à leur matrice densité dans l'état I_i immédiatement antérieur par

$$\sigma_{m'm''}(t') = \sum_{FP'M_1} \langle L_1 M_1 I m' | L_1 I I_i p \rangle \sigma_{pp'}(t') \langle L_1 I I_i p' | L_1 M_1 I m'' \rangle \quad (\text{II.37})$$

On en déduit :

$$[\sigma_k^{q*}(I)]_{in} = \sigma_k^{q*}(I_i) (-1)^{L_1+I_i+I+k} (2I_i+1) \begin{Bmatrix} I & k & I \\ I_i & L_1 & I_i \end{Bmatrix} = U_{I_i \rightarrow I}(k) \sigma_k^{q*}(I_i) \quad (II.38)$$

L'émission spontanée ne mélange pas les σ_k^q . Ce résultat, retrouvé récemment dans le domaine optique ⁽²³⁾, était connu depuis longtemps en orientation nucléaire comme nous allons le voir ci-dessous

Notons que l'on a la relation

$$[\sqrt{2I+1} \sigma_0^0(I)]_{in} = \sqrt{2I_i+1} \sigma_0^0(I_i)$$

qui exprime la conservation du nombre des noyaux au cours du processus d'émission spontanée.

4°/ Relation entre l'anisotropie du rayonnement γ et les σ_k^q .

Nous avons vu qu'en fonction des matrices densité des différentes classes de noyaux à l'instant t , le rayonnement γ_2 émis dans l'angle solide $d\psi_2$ est donné par

$$\begin{aligned} d\psi_2 \int L(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 \\ = d\psi_2 \frac{\Gamma_1 \Gamma_2}{2} \left(\frac{2L_2+1}{8\pi} \right) \int_{-\infty}^t e^{-\Gamma_2(t-t')} dt' \sum_{k_2 N_2} A_2^I(k_2) \frac{1}{\sqrt{2k_2+1}} Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \phi_2) \sum_{m''' m} (-1)^{I+m} \\ (2k_2+1) \begin{Bmatrix} I & I & k_2 \\ m''' & -m & N_2 \end{Bmatrix} \left[\sigma_{m, m'''}(t, t') \right]_{em} + c.c \end{aligned}$$

soit en passant aux σ_k^q :

$$\begin{aligned} d\psi_2 \int L(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 \\ = d\psi_2 \frac{\Gamma_1 \Gamma_2}{2} \left(\frac{2L_2+1}{8\pi} \right) (-1)^{2I} \int_{-\infty}^t e^{-\Gamma_2(t-t')} dt' \sum_{k_2 N_2} \sqrt{2k_2+1} A_2^I(k_2) \\ \left[\sigma_{k_2}^{N_2*}(t, t') \right]_{em} \frac{Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \phi_2)}{\sqrt{2k_2+1}} + c.c. \end{aligned}$$

Posons

$$F_2(k_2) = \frac{2L_2+1}{8\pi} \frac{(-1)^{2I}}{\sqrt{2I+1}} \sqrt{\frac{2k_2+1}{4\pi}} A_2^I(k_2) \quad (II.39)$$

ceci devient :

$$d\psi_2 \int L(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 = d\psi_2 \Gamma_1 \Gamma_2 \int_{-\infty}^t e^{-\Gamma_2(t-t')} dt' \sum_{kN} F_2(k) \sqrt{2I+1} \left[\sigma_k^{N*}(t, t') \right]_{em} \sqrt{\frac{4\pi}{2k+1}} Y_k^N(\theta, \phi) \quad (II.40)$$

Nous allons maintenant examiner un certain nombre de cas particuliers et montrer comment ces formules se raccordent aux expressions classiques (en supposant pour simplifier que le noyau n'est pas soumis à de la radiofréquence)

a) Si la durée de vie du niveau I est très longue ($\Gamma_2 \rightarrow 0$), tous les noyaux I auront, avant réémission de $\vec{k}_2$, le temps d'atteindre l'état d'équilibre thermique correspondant à ce niveau

$$\left[\sigma_{k_2}^{N_2}(t, t')^* \right]_{em} = \left[\sigma_{k_2}^{N_2}(I) \right]_0$$

Alors

$$W(\theta_2, \phi_2) d\psi_2 \equiv d\psi_2 \int L(\psi_1, \psi_2) d\psi_1 = d\psi_2 \Gamma_1 \sum_{kN} F_2(k) \sqrt{2I+1} \left[\sigma_k^{N*}(I) \right]_0 \frac{\sqrt{4\pi} Y_k^N(\theta_2, \phi_2)}{\sqrt{2k+1}} \quad (II.41)$$

Une formule de ce type avait été établie par de Groot et Cox⁽²⁵⁾ dès 1953. Pour une matrice densité diagonale et si l'on pose $\sqrt{2I+1} \sigma_k^0(I) = B_k(I)$

$$W(\theta_2, \phi_2) d\psi_2 = d\psi_2 \Gamma_1 \sum_k F_2(k) B_k(I) P_k(\cos \theta_2) \quad (II.42)$$

en accord avec les résultats classiques.

Compte tenu de ce que $F_0(k) = 1/4\pi$, on vérifie aisément que l'on a bien

$$\int W(\theta_2, \phi_2) d\psi_2 = \Gamma_1 B_0(I) = \Gamma_1 B_0(I_i) = \Gamma_1$$

b) Si la durée de vie du niveau I est très courte, la matrice densité des noyaux n'aura pas le temps d'évoluer pendant leur séjour dans ce niveau

$$\left[\sigma_{k_2}^{N_2}(t, t')^* \right]_{em} = \left[\sigma_{k_2}^{N_2}(t') \right]_{in} = U_1(k) \left[\sigma_{k_2}^{N_2}(I_i) \right]_0$$

(en supposant le niveau de départ I_i à l'équilibre thermique)

Dans ce cas, les équations (II.41) et (II.42) deviennent (*)

$$W(\theta_2, \phi_2) d\psi_2 = d\psi_2 \Gamma_1 \sqrt{\frac{2I+1}{2I_i+1}} \sum_{kN} U_1(k) F_2(k) \sqrt{2I_i+1} [\sigma_{k2}^{N*}(I_i)]_0 \frac{\sqrt{4\pi} Y_k^N(\theta_2, \phi_2)}{\sqrt{2k+1}} \quad (II.43)$$

$$W(\theta_2, \phi_2) d\psi_2 = d\psi_2 \Gamma_1 \sqrt{\frac{2I+1}{2I_i+1}} \sum_{kN} U_1(k) F_2(k) B_k(I_i) P_k(\cos \theta_2) \quad (II.44)$$

De façon plus générale, si l'on a une cascade dans laquelle tous les niveaux intermédiaires ont une durée de vie très courte, la relation entre l'anisotropie du dernier γ et la matrice densité du niveau de départ sera de la même forme que (II.44) avec des coefficients $U(k)$ qui seront les produits des $U(k)$ correspondant aux transitions successives. Ce résultat-là est également classique (20).

c) Cas intermédiaire : réorientation partielle dans l'état intermédiaire sous l'effet de la relaxation.

Cette situation est celle qui est envisagée au chapitre VII. Les matrices densité mises en jeu étant diagonales, la relation entre la matrice densité de l'état de départ $[\sigma_{I_i}]_0$ et la matrice initiale de l'état intermédiaire

$[\sigma_I(t')]_{in} = \sigma_{Iin}$ est obtenu par un calcul de probabilités de transition. La résolution de l'équation d'évolution des populations de I permet de passer de

$[\sigma_I(t')]_{in}$ à $[\sigma_I(t, t')]_{em}$ et l'anisotropie du rayonnement γ_2 est fournie par intégration d'une expression de type (II.40).

Notons qu'un résultat identique est obtenu sans intégration quand on remplace dans (II.40), les quantités $\int_{-\infty}^t e^{-\Gamma_2(t-t')} [\sigma_k^o(t, t')]_{em} dt'$ par les solutions en régime permanent $(dp_m/dt) = 0$ du système qu'on obtient en ajoutant aux équations d'évolution des populations dans l'état I :

- d'une part des termes d'alimentation radiative (fournis par σ_{Iin})
- d'autre part des termes de désexcitation radiative en $-\Gamma_2 p_m$

d) Remarque.

Les coefficients F_k (eq.(II.39)) et A_k (eq.(II.27)) ne sont différents de zéro que si k est pair. Ceci correspond au fait ((19) p. 1207) que seules les composantes circulaires individuelles du rayonnement électromagnétique sont sensibles aux termes de k impair de la matrice densité. Ici nous sommes sur les polarisations.

* On a l'habitude de poser $\sqrt{\frac{2I+1}{2I_i+1}} U_1(k) = U_k$ et $4\pi F_2(k) = F_k$

C H A P I T R E I I I

E F F E T S D E L A R E L A X A T I O N

I - G E N E R A L I T E S -

Nous avons vu au chapitre précédent que la distribution angulaire du rayonnement γ_2 dépend essentiellement de l'évolution du système dans l'état intermédiaire I. Nous nous proposons dans ce chapitre d'expliciter cette dépendance lorsque l'hamiltonien dans cet état est égal à :

$$\mathcal{H}_A = \mathcal{H}_n I_z + \mathcal{H}_1(t) = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1(t) \quad (\text{III.1})$$

$\mathcal{H}_n I_z$ représente l'effet du champ magnétique extérieur et du champ hyperfin moyen, tandis que $\mathcal{H}_1(t)$ est associé aux fluctuations des interactions hyperfines autour de leur valeur moyenne (la moyenne temporelle de $\mathcal{H}_1(t)$ est donc nulle). Ces fluctuations sont responsables de la relaxation et sont caractérisées par un temps de corrélation τ_c . Nous étudierons successivement l'influence de la relaxation sur les expériences de corrélations angulaires perturbées et sur les expériences d'orientation nucléaire. Nous supposerons les impuretés suffisamment diluées pour que leurs relaxations soient découplées.

I I - E F F E T S D E L A R E L A X A T I O N D A N S L E S E X P E R I E N C E S D E C O R R E L A T I O N S A N G U L A I R E S P E R T U R B E E S .

Il s'agit de calculer les quantités $G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t, t')$ introduites au chapitre précédent (II.28). Nous ferons les calculs dans les deux cas suivants :

- τ_c est court par rapport aux périodes propres du noyau dans l'état intermédiaire.
- τ_c est quelconque.

Dans chacun de ces cas nous résumerons brièvement une théorie que nous avons élaborée (17) et ferons si nécessaire une étude critique des principales autres théories en présence.

1°/ τ_c est court par rapport aux périodes propres du noyau.

On peut utiliser une méthode de perturbation. Ce traitement a été employé pour la première fois par Abragam et Pound ⁽²⁶⁾ qui ont calculé les facteurs

$G_{k_1 k_2}^{00}(t)$ en présence d'un champ hyperfin ou d'un gradient de champ électrique fluctuant dont les fluctuations ont la symétrie sphérique. Nous allons étendre ce traitement au calcul de G quelconques et abandonner l'hypothèse de "symétrie sphérique" des fluctuations lorsque la grandeur physique fluctuante est un champ magnétique.

Le point de départ de ce calcul est l'équation d'évolution de la matrice densité écrite jusqu'au deuxième ordre en représentation interaction.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = - \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t [\tilde{\mathcal{H}}_1(t), [\tilde{\mathcal{H}}_1(t-\tau), \rho(0)]] \quad (\text{III.2})$$

que l'on résout suivant la technique classique exposée dans le livre d'Abragam ⁽²⁷⁾.

$$\text{On pose } \tilde{\mathcal{H}}_1 = \sum_p U_\ell^p(I) F^p \quad (\text{III.3})$$

où les U_ℓ^p sont les composantes d'un opérateur tensoriel irréductible d'ordre ℓ agissant sur les variables nucléaires, tandis que les opérateurs F^p agissent sur le système "réservoir" responsable de la relaxation du spin I (électrons de conduction, réseau). En représentation interaction :

$$\tilde{\mathcal{H}}_1(t) = \sum_p U_\ell^p(t) F^p(t) \quad (\text{III.4})$$

et l'on pose $U_\ell^p(t) = e^{i\omega^p t} U_\ell^p$ avec $\begin{cases} \omega^{p'} \neq \omega^p & \text{si } p' \neq p \\ \omega^{-p} = -\omega^p \end{cases}$

En prenant la trace sur les variables du réseau, l'équation d'évolution de la matrice densité devient: ⁽²⁸⁾

$$\begin{aligned} \frac{d\rho}{dt} = & - \frac{1}{\hbar^2} \sum_{pp'} e^{i(\omega^p + \omega^{p'})t} \left\{ (U_p U_{p'} \rho(0) - U_{p'} \rho(0) U_p) \right. \\ & \times \int_0^t e^{-i\omega^{p'} \tau} F^p(t) F^{p'}(t-\tau) d\tau \\ & \left. + (-U_p \rho(0) U_{p'} + \rho(0) U_{p'} U_p) \int_0^t e^{-i\omega^{p'} \tau} F^{p'}(t-\tau) F^p(t) d\tau \right\} \end{aligned} \quad (\text{III.5})$$

Puis on fait un certain nombre d'approximations :

- on néglige la corrélation entre F et ρ
- on remplace $\rho(0)$ par $\rho(t)$
- on étend la limite supérieure des intégrales sur τ jusqu'à l'infini
- on néglige les termes en $e^{i(\omega_p + \omega_{p'})t}$ rapidement oscillants ($p' \neq -p$)

(Approximation séculaire).

La validité de ces approximations est reliée à la brièveté de τ_c (temps de corrélation de F). On suppose encore que :

- $|\hbar\omega_p| \ll k_B T$ quel que soit p (hautes températures)

Enfin on néglige les petits termes imaginaires de déplacement de fréquence.

Finalement si l'on pose :

$$J_{p-p}(\omega^p) = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{F^p(0) F^{p+}(-\tau) + F^{p+}(-\tau) F^p(0)}{2} e^{i\omega^p \tau} d\tau \quad (\text{III.6})$$

l'équation d'évolution devient, en revenant à la représentation normale

$$\frac{d\sigma}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\mathcal{H}_0, \sigma] - \frac{1}{2\hbar^2} \sum_p J_{p-p}(\omega^p) \left[U_\ell^p [U_\ell^{p+}, \sigma - \sigma_0] \right] \quad (\text{III.7})$$

où σ_0 est la matrice densité à l'équilibre thermique.

Si maintenant nous développons σ en opérateurs tensoriels irréductibles

$$\sigma = \sum_{kq} \sigma_k^{q*} T_k^q \quad \text{il vient :}$$

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_k^{q*}}{dt} = & -\frac{i}{\hbar} \sum_{k'q'} \sigma_{k'}^{q'*} < T_k^{q+} [\mathcal{H}_0, T_{k'}^{q'}] > \\ & - \frac{1}{2\hbar^2} \sum_{k'q'p} J_{p-p}(\omega^p) \{ \sigma_{k'}^{q'*} - (\sigma_{k'}^{q'*})_0 \} < T_k^{q+} [U_\ell^p [U_\ell^{p+}, T_{k'}^{q'}]] > \end{aligned} \quad (\text{III.8})$$

Le premier terme se calcule aisément en remplaçant $\mathcal{H}_0$ par son expression :

$$< T_k^{q+} [\mathcal{H}_0, T_{k'}^{q'}] > = \hbar\omega_n q \delta_{kk'} \delta_{qq'} \quad (\text{III.9})$$

Le deuxième terme couple en général les évolutions temporelles des σ_k^{q*} . Cependant il est facile de montrer qu'il existe au moins deux cas de découplage :

a) La relaxation est due à un champ fluctuant.

$$\mathcal{R}_1 = - \mathcal{M} \gamma_n \left[H_z I_z + \frac{1}{2} (H^+ I^- + H^- I^+) \right] = - \mathcal{M} \gamma_n \left[U_1^0 F^0 + U_1^1 F^1 + U_1^{-1} F^{-1} \right] \quad (\text{III.10})$$

L'équation (III.8) devient alors :

$$\frac{d\sigma_k^{q*}}{dt} = - i q \omega_n \sigma_k^{q*} - \lambda_k^{-q} \left\{ \sigma_k^{q*} - (\sigma_k^{q*})_0 \right\} \quad (\text{III.11})$$

où

$$\lambda_k^{-q} = \frac{1}{2\mathcal{M}^2} \left\{ J_{00}(0) q^2 + J_{1-1}(\omega_n) \left(\frac{k(k+1) - q(q-1)}{2} \right) + J_{-11}(-\omega_n) \left(\frac{k(k+1) - q(q+1)}{2} \right) \right\} \quad (\text{III.12})$$

Les constantes J étant reliées aux temps de relaxation nucléaires transversal et longitudinal T_2 et T_1 par

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{\mathcal{M}^2} J_{-11}(-\omega_n) = \frac{1}{\mathcal{M}^2} J_{1-1}(\omega_n) \text{ et } \frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{2\mathcal{M}^2} J_{00}(0) \quad (\text{III.13})$$

En utilisant la relation (II.35) il vient immédiatement

$$G_{kk'}^{qq'}(t, t') = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \exp \left[(-i q \omega_n - \lambda_k^q) (t - t') \right] \quad (\text{III.14})$$

avec

$$\lambda_k^q = \frac{k(k+1)}{2T_1} + q^2 \left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right)$$

b) La relaxation a la symétrie sphérique.

Nous entendons par là que $J_{p-p}(\omega^p) = J$ quel que soit p. L'équation (III.8) se réduit également à la forme (III.11) avec :

$$\lambda_k^{-q} = \lambda_k = \frac{J}{2\mathcal{M}^2} \frac{|<I||U_2||I>|^2 k(k+1)}{(2I+1)(I+1)I} \quad (\text{III.15})$$

$$\text{D'où } G_{kk'}^{qq'}(t, t') = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \exp \left[(-i q \omega_n - \lambda_k)(t - t') \right] \quad (\text{III.16})$$

Quelles sont les conditions de validité de ce calcul ? En reprenant les étapes de celui-ci on voit que les diverses approximations se réduisent à :

- développement de perturbation au second ordre : $\frac{\mathcal{H}_1^2 \tau_c^2}{\mathcal{H}^2} \ll 1$
- approximation séculaire : $\frac{\mathcal{H}_1^2}{\mathcal{H}^2} \tau_c \ll |\omega_n|$
- approximation de hautes températures : $|\frac{\mathcal{H}\omega_n}{k_B T}| \ll 1$

Des résultats identiques ont été obtenus indépendamment par H. Gabriel⁽²⁹⁾ à l'aide d'une méthode différente mais avec les mêmes approximations.

2/ τ_c est quelconque.

Ce cas a été abordé pour la première fois par Blume⁽³⁰⁾ qui a utilisé la "méthode des sauts" d'Anderson et Weiss, méthode que nous avons appliquée nous-même à quelques cas particuliers⁽¹⁷⁾. Très récemment H. Gabriel⁽³¹⁾ a proposé une deuxième méthode assez complexe basée comme précédemment sur la résolution de l'équation d'évolution de la matrice densité qui, d'après son auteur, est valable quel que soit τ_c . Nous présentons très brièvement ici la première méthode et nous montrons que la deuxième n'est valable que dans un domaine relativement limité.

2.1. Méthode des sauts.

Dans ce modèle on suppose les noyaux soumis à un hamiltonien fluctuant de la forme

$$\mathcal{H}(t) = -g_n \mu_n I_z h(t) \quad (\text{III.17})$$

où $f(t)$ saute entre plusieurs valeurs. ($\mathcal{H}(t)$ représente donc un champ dont les fluctuations sont purement longitudinales). On suppose que ces sauts forment un processus de Markov stationnaire, c'est à dire que la probabilité pour que $f(t)$ soit égale à b au temps $t + \Delta t$, $f(t)$ ayant pris la valeur a au temps t , ne dépend que de a et du temps Δt .

Physiquement, ce modèle correspond par exemple à un spin électronique S fluctuant dans un champ magnétique H_e et donnant ainsi naissance à un champ magnétique variable sur le noyau à travers le couplage hyperfin A.I.S. Pour que ce traitement soit valable, il faut que la fréquence des sauts $1/\tau$ ne soit pas suffisamment grande pour provoquer un élargissement énergétique des niveaux du spin électronique S non négligeable par rapport à la différence d'énergie entre ces niveaux

$$\left(\left| -\frac{E_{B^H}}{\mathcal{H}} e \right| \gg \frac{1}{\tau} \right).$$

Nous avons traité les cas simples suivants (le champ fluctuant étant toujours supposé parallèle à Oz) :

- champ sautant entre deux valeurs (égales ou non en valeur absolue.) inégalement probables.
- champ sautant entre trois valeurs $h, 0, -h$ inégalement probables

Schématiquement, ceci peut être réalisé avec un spin $S = 1/2$ ou $S = 1$ placé dans un champ magnétique extérieur H_0 tel que $|g\mu_B H_0| > k_B T$, de sorte que les différents niveaux $S_z = m$ aient des populations différentes.

Les grandes lignes du calcul sont les suivantes :

On peut montrer que les facteurs G s'écrivent :

$$G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) = \delta_{N_1 N_2} \delta_{k_1 k_2} \exp \left(i g_n \mu N_1 \int_0^t h(t') dt' \right) \quad (\text{III.18})$$

En utilisant la même méthode que dans la théorie de la largeur de raie en présence de mouvement des spins (cf. Abragam ⁽²⁷⁾ p. ex), on peut démontrer que

$$G_{kk}^{NN}(t) = V \exp \left[(i g_n \mu N F_h + W) t \right] I \quad (\text{III.19})$$

cù V est une matrice ligne dont les éléments sont proportionnelles aux probabilités d'occupation des divers niveaux à l'équilibre thermique, F_h est une matrice diagonale dont les éléments sont égaux aux différentes valeurs prises par h , W est une matrice dont les éléments W_{jk} sont égaux aux probabilités de transition électroniques par unité de temps de l'état j à l'état k (et $W_{jj} = - \sum_k W_{jk}$), I est une matrice colonne dont les éléments sont égaux à l'unité.

Plutôt que de calculer $G_{kk}^{NN}(t)$, on préfère calculer le facteur de perturbation intégrale

$$\bar{G}_{kk}^{NN} = \Gamma_2 \int_0^\infty G_{kk}^{NN}(t) e^{-\Gamma_2 t} dt = \Gamma_2 V \cdot A^{-1} \cdot I \quad (\Gamma_2 = \frac{1}{\tau_n})$$

cù
$$A^{-1} = - i g_n \mu N F_h + W - E \Gamma_2 \quad (E \text{ est la matrice unité}) \quad (\text{III.20})$$

L'inversion de la matrice A est très simple et, de l'expression de $\bar{G}_{kk}^{NN}$ obtenue on déduit aisément $G_{kk}^{NN}(t)$ par une transformée de Laplace inverse. Les résultats trouvés ont des interprétations physiques simples dans les limites suivantes :

- si les sauts s'effectuent très rapidement, tout se passe comme si le spin nucléaire était soumis à un champ statique égal à la moyenne temporelle du champ aléatoire, les fluctuations autour de cette valeur moyenne ayant pour effet d'introduire dans $G_{kk}^{NN}(t)$ un terme d'amortissement similaire à celui d'Abragam et Pound.

- si les sauts sont très lents, $G_{kk}^{NN}(t)$ se présente comme la moyenne pondérée par les facteurs de probabilité des G_{kk}^{NN} associés à chacun des états de spin électronique.

Notons pour terminer que cette méthode suppose que :

- $\mathcal{H}$ soit diagonal à tous les instants dans une même base, c'est à dire que $[\mathcal{H}(t), \mathcal{H}(t')] = 0$ ce qui n'est pas le cas par exemple si le système est soumis à un champ magnétique ou à gradient quadrupolaire statique non colinéaire à la direction du champ fluctuant.

- le spin électronique agisse sur le noyau de la même façon qu'un champ magnétique extérieur, c'est à dire que la partie électronique de l'interaction hyperfine soit diagonale. Ceci n'est pas vérifié si l'interaction hyperfine est de l'ordre de l'énergie du spin électronique dans le champ magnétique extérieur appliqué.

En utilisant le formalisme des opérateurs de Liouville, Blume a récemment pu élaborer des théories abandonnant la première hypothèse ⁽³²⁾ puis la seconde ⁽³³⁾ ce qui lui a permis de traiter dans un modèle simplifié le cas d'une interaction fluctuante isotrope ⁽³⁴⁾, τ_c étant quelconque.

2.2. Méthode de Gabriel.

Reprenons l'équation d'évolution de la matrice densité en représentation interaction. Si $\mathcal{H}_1$ est l'hamiltonien fluctuant

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\tilde{\mathcal{H}}_1, \rho] \quad (\text{III.21})$$

ou encore

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\tilde{\mathcal{H}}_1, \rho(t)] - \frac{1}{\hbar^2} \int_{t'}^t [\tilde{\mathcal{H}}_1(t) [\tilde{\mathcal{H}}_1(t''), \rho(t'')]] dt'' \quad (\text{III.22})$$

Cette équation est exacte. Le point de départ de Gabriel consiste à ne faire sur cette équation que la première des quatre approximations énumérées au paragraphe II.1 : moyenniser indépendamment sur $\mathcal{H}_1$ et sur ρ . Gabriel obtient ainsi une équation intégrale dont il simplifie considérablement la forme en recourant au formalisme de Liouville et qu'il peut alors résoudre par transformation de Laplace. Les résultats du calcul s'expriment en fonction des seules fonctions de corrélation d'ordre deux de $\mathcal{H}_1(t)$, ce qui n'est pas surprenant compte tenu de l'approximation faite, mais suggère que cette théorie est en fait une théorie de perturbation dont la validité est limitée.

Conditions de validité de la théorie de Gabriel.

Elles sont plus faciles à obtenir dans le cadre du formalisme de Liouville. Soient L_0 , L_1 , L_R les opérateurs de Liouville* associés à $\mathcal{H}_0$, $\mathcal{H}_1$ et à l'hamiltonien de réseau $\mathcal{H}_R$. En représentation d'interaction on trouve que le facteur de perturbation de la corrélation intégrale s'écrit (eq (29) et (35) de (29)) :

$$\bar{G}_{kk'}^{qq'}\left(\frac{1}{\tau_n}\right) = \langle kq | \frac{1/\tau_n}{\frac{1}{\tau_n} \hat{I} + iL_0 + \hat{M}\left(\frac{1}{\tau_n}\right)} | k' q' \rangle \quad (\text{III.23})$$

avec (eq. (30) de (29)) $\hat{M}\left(\frac{1}{\tau_n}\right) = \int_0^\infty dt e^{-t/\tau_n} \hat{M}(t)$ (III.24)

dans laquelle $\hat{M}(t)$ a l'expression exacte (eq. (19) de (29))

$$\hat{M}(t) = \text{Trace}_R [\mathcal{H}_1 e^{-it(1-P)(L_0 + L_1 + L_R)} \mathcal{H}_1 \rho_T(R)] \quad (\text{III.25})$$

où $P = \rho_T(R) \text{ Trace}_R$ ($\rho_T(R)$ étant la matrice densité à l'équilibre thermique du réservoir).

L'approximation faite par Gabriel consiste à négliger le terme en L_1 dans l'exponentielle de (III.25) : $\hat{M}(t)$ devient alors un opérateur du deuxième ordre en $\mathcal{H}_1$, en accord avec nos remarques antérieures. Pour que ceci soit justifié il faut que pendant le temps physique d'observation $L_1 t$ soit très petit par rapport à 1. D'après (III.24) ce temps caractéristique est τ_n . La condition de validité de la théorie de Gabriel est donc

$$M^{-2} \mathcal{H}_1^2 \tau_n^2 \ll 1 \quad (\text{III.26})$$

Lorsque cette condition est satisfaite nous allons voir qu'il est possible de retrouver schématiquement les résultats de Gabriel en utilisant le développement en série de la matrice densité pour les temps courts.

* On sait que l'opérateur de Liouville L associé à $\mathcal{H}$ est défini par

$$L A = \mathcal{H} A - A \mathcal{H}$$

où A est lui-même un opérateur conventionnel.

Admettons pour fixer les idées que

$$\tilde{\mathcal{X}}_1(t) \tilde{\mathcal{X}}_1(t'') \sim \sum_Q \langle \mathcal{X}_1^2 \rangle_Q e^{-iQ\omega_n t} e^{-1/\tau_c (t-t'')}$$

où Q prend un petit nombre de valeurs entières ($Q = 0, \pm 1$ pour un champ fluctuant) et que les quantités ρ_k^{q*} soient découplées.

Nous avons vu que si τ_c est court devant les périodes propres du noyau ($\tau_c \ll \tau_n$) :

$$\frac{d\rho_k^{q*}}{dt} = -\lambda_k^q \rho_k^{q*} \text{ avec } \lambda_k^q \sim \sum_Q f_k^{qQ} J_Q(\omega) \quad (\text{III.28})$$

$$\text{où } J_Q(\omega) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-iQ\omega_n t} \langle \mathcal{X}_1^2 \rangle_Q e^{-|t|/\tau_c} dt \quad (\text{III.29})$$

soit

$$\lambda_k^q \sim \sum_Q f_k^{qQ} \mathcal{N}^{-2} \frac{\langle \mathcal{X}_1^2 \rangle_Q 1/\tau_c}{(Q\omega_n)^2 + 1/\tau_c^2} \quad (\text{III.30})$$

(Expression obtenue, rappelons le, en négligeant suivant la coutume, des petits termes imaginaires de déplacement de fréquence)

Dans les expériences de corrélation intégrales $\omega_n \sim 1/\tau_n$ d'où

$$\lambda_k^q \sim \mathcal{N}^{-2} \langle \mathcal{X}_1^2 \rangle \tau_c.$$

Supposons maintenant au contraire que τ_c est long, mais le temps d'observation court ($\mathcal{N}^{-2} \langle \mathcal{X}_1^2 \rangle (t-t')^2 \ll 1$ soit ici $\mathcal{N}^{-2} \langle \mathcal{X}_1^2 \rangle \tau_n^2 \ll 1$). Alors (III.22) peut s'écrire

$$\frac{d\rho}{dt} \approx -\frac{1}{\mathcal{N}^2} \int_0^{t-t'} [\tilde{\mathcal{X}}_1(0), [\tilde{\mathcal{X}}_1(-\tau), \rho(t')]] d\tau \quad (\text{III.31})$$

il en résulte que schématiquement

$$\frac{d\rho_k^{q*}}{dt} \approx -\frac{1}{\mathcal{N}^2} \langle \mathcal{X}_1^2 \rangle_Q \left[\frac{1 - e^{(-1/\tau_c - iQ\omega_n)(t-t')}}{\frac{1}{\tau_c} + iQ\omega_n} \right] \rho_k^{q*}(t') \quad (\text{III.32})$$

$$\text{or d'après (II.35)} \quad \frac{d}{dt} \rho_k^{q*}(t) = \left[\frac{d}{dt} G_{kk}^{qq}(t, t') \right] \rho_k^{q*}(t') \quad (\text{III.33})$$

$$\text{D'où } \hat{G}_{kk}^{qq}(t, t') = 1 - \frac{\mathcal{N}^{-2} \langle \mathcal{X}_1^2 \rangle_Q (t-t')}{\frac{1}{\tau_c} + iQ\omega_n} - \frac{\mathcal{N}^{-2} \langle \mathcal{X}_1^2 \rangle_Q [e^{(-1/\tau_c - iQ\omega_n)(t-t')} - 1]}{(1/\tau_c + iQ\omega_n)^2} \quad (\text{III.34})$$

soit pour le facteur de perturbation intégral

$$\bar{G}_{kk}^{qq} = \Gamma_2 \int_{-\infty}^t G_{kk}^{qq}(t, t') e^{-\Gamma_2(t-t')} dt' = \frac{1}{\tau_n} \int_{-\infty}^t \tilde{G}_{kk}^{qq}(t, t') e^{-\Gamma_2(t-t') - i\omega_n(t-t')} dt' \quad (\text{III.35})$$

$$= \frac{1/\tau_n}{1/\tau_n + i\omega_n} \left[1 - \frac{1}{1/\tau_n + i\omega_n} \frac{M^2 < \mathcal{H}_I^2 >_Q}{1/\tau_n + i\omega_n + 1/\tau_c + i\omega_n} \right] \quad (\text{III.36})$$

Mais, puisque $M^{-2} < \mathcal{H}_I^2 >_{\tau_n^2} \ll 1$, le deuxième terme du crochet est très inférieur au premier et l'on a aussi

$$\bar{G}_{kk}^{qq} = \frac{1/\tau_n}{\frac{1}{\tau_n} + i\omega_n + \frac{M^{-2} < \mathcal{H}_I^2 >_Q}{\frac{1}{\tau_n} + i\omega_n + \frac{1}{\tau_c} + i\omega_n}} \quad (\text{III.37})$$

Ce résultat est en accord avec les équations (52) et (46 b) ⁽²⁹⁾ et (4) ⁽³¹⁾ de Gabriel, compte tenu de ce que $\frac{\hbar\omega_n}{k_B T} \ll 1$, et de l'hypothèse faite sur la forme

de la fonction de corrélation (eq.(III.27)). Physiquement le fait que dans les formules τ_c soit en quelque sorte remplacé par τ_n lorsque $\tau_c > \tau_n$ paraît satisfaisant: ceci signifie simplement que l'hamiltonien fluctuant $\mathcal{H}_I$ n'a pas le temps de produire son plein effet pendant le court séjour du noyau dans l'état intermédiaire I; les termes de relaxation sont donc réduits en gros dans le rapport τ_n/τ_c .

Notons que lorsque cet effet de réduction joue, les conditions de validité de la théorie de Gabriel font que le terme de relaxation dans (III.37) est toujours très petit par rapport à $1/\tau_n$. Ceci rendra son étude difficile et ses manifestations peu spectaculaires, même dans les expériences de corrélations différentielles, contrairement à ce que l'on aurait si la formule (III.37) était valable sans restrictions ($\tilde{G}(t)$ pourrait alors avoir un comportement oscillant analogue à celui que prédit la méthode des sauts).

Nous allons maintenant résumer les différentes inégalités qui sont intervenues au cours des considérations précédentes et en tirer des conclusions pratiques.

Théorie classique de la relaxation (τ_n ou $t-t' \gg \tau_c$)

$$\mathcal{H}^{-2} \overline{\mathcal{H}}_1^2 \tau_c^2 \ll 1 \quad \text{méthode de perturbation}$$

$$\mathcal{H}^{-2} \overline{\mathcal{H}}_1^2 \tau_c \ll \omega_n \quad \text{approximation séculaire}^*$$

$\omega_n \tau_c \ll 1$ et fluctuations instantanées isotropes (relaxation de symétrie sphérique)

On peut alors distinguer les différents cas

$$\boxed{\mathcal{H}^{-2} \overline{\mathcal{H}}_1^2 \ll \omega_n^2}$$

$\omega_n \tau_c \ll 1$ perturbations, approximation séculaire. Si de plus les fluctuations instantanées sont isotropes : relaxation de symétrie sphérique. Théorie d'Abragam et Pound généralisée (A P G) (eq. (III.16)).

$\left. \begin{array}{l} \omega_n \tau_c \gtrsim 1 \\ \mathcal{H}^{-2} \overline{\mathcal{H}}_1^2 \tau_c^2 \ll 1 \end{array} \right\}$ perturbations, approximation séculaire mais relaxation anisotrope. pour un champ fluctuant (eq. (III.14)), Théorie Spanjaard-Hartmann-Gabriel (GSH).

$\left. \begin{array}{l} \omega_n \tau_c \gtrsim 1 \\ \mathcal{H}^{-2} \overline{\mathcal{H}}_1^2 \tau_c^2 \gtrsim 1 \end{array} \right\}$ Théorie non valable

$$\boxed{\mathcal{H}^{-2} \overline{\mathcal{H}}_1^2 \gtrsim \omega_n^2}$$

$\left. \begin{array}{l} \omega_n \tau_c \ll 1 \\ \mathcal{H}^{-2} \overline{\mathcal{H}}_1^2 \tau_c^2 \ll 1 \end{array} \right\}$ Théorie A P G

$\left. \begin{array}{l} \omega_n \tau_c \gtrsim 1 \end{array} \right\}$ Théorie non valable

Théories stochastiques (méthode des sauts ou théories de Blume)

reposent sur des modèles physiques approchés mais sont valables quels que soient le temps de corrélation et le temps d'observation

* Pour un hamiltonien statique de type Zeeman, l'approximation séculaire a pour effet de découpler les relaxations des ρ_k^q de q différents. Un découplage identique se produit, même lorsque l'approximation séculaire n'est pas valable, si les fluctuations instantanées de $\mathcal{H}_1(t)$ sont isotropes ou ont la symétrie cylindrique.

Application

Choix des théories à utiliser dans l'interprétation des expériences de corrélations angulaires perturbées.

Pour simplifier nous supposons $M^{-2} \frac{\overline{\mathcal{D}}_1^2}{\mathcal{L}^2} \omega_n^2$, ce qui correspond à la situation la plus courante.

Corrélations intégrales

Dans ces expériences $\omega_n \tau_n \sim 1$. Temps d'observation de l'ordre de quelques τ_n

= si $\tau_c \ll \tau_n$ théorie APG

= si $\tau_c > \tau_n$

$M^{-2} \frac{\overline{\mathcal{D}}_1^2}{\mathcal{L}^2} \tau_n^2 \ll 1$: nouvelle théorie de Gabriel, mais effets très petits

$M^{-2} \frac{\overline{\mathcal{D}}_1^2}{\mathcal{L}^2} \tau_n^2 \gtrsim 1$: théories stochastiques (sauts- Blume)

Corrélations différentielles

Dans ce cas on peut très bien avoir $\omega_n \tau_n \gg 1$. Quant aux temps d'observation, ils sont de quelques τ_n

si $\tau_c \ll \tau_n$ et $\omega_n \tau_c \ll 1$ théorie A P G

si $\tau_c \ll \tau_n$, $\frac{\overline{\mathcal{D}}_1^2}{\mathcal{L}^2} \tau_c^2 \ll 1$ et $\omega_n \tau_c \gtrsim 1$ théorie G S II

si $\tau_c \gtrsim \tau_n$, $\frac{\overline{\mathcal{D}}_1^2}{M^2} \tau_n^2 \ll 1$ nouvelle théorie de Gabriel

si $\tau_c \gtrsim \tau_n$, $\frac{\overline{\mathcal{D}}_1^2}{M^2} \tau_n^2$ quelconque : théories stochastiques

III - Relaxation dans les expériences d'orientation nucléaire.

Nous nous limiterons au cas où la relaxation est due à un champ magnétique fluctuant dont l'interaction avec le noyau est représentée par un hamiltonien $\mathcal{H}_1(t)$. Ce noyau est d'autre part soumis à un hamiltonien statique $\mathcal{H}_0 = \gamma \omega_n I_z$ (champ extérieur ou champ hyperfin moyen). D'où

$$\mathcal{H} = \gamma \omega_n I_z + \mathcal{H}_1(t) \quad (\text{III.38})$$

Nous négligeons toute interaction entre noyaux d'impuretés et nous supposons que le temps de corrélation des fluctuations τ_c est inférieur à τ_n et suffisamment court pour que l'on puisse appliquer la théorie des perturbations. Nous montrerons que ces hypothèses sont bien vérifiées dans les situations expérimentales étudiées dans le chapitre VII.

En faisant les mêmes approximations qu'au paragraphe II, mais en supposant cette fois-ci le rapport $\gamma \omega_n / kT$ quelconque, l'équation d'évolution de la matrice densité en représentation interaction s'écrit

$$\frac{d\rho}{dt} = - \frac{1}{2M^2} \left\{ \sum_p J_{p \rightarrow p}(\omega^p) [U_\ell^p [U_\ell^{p\dagger}, \rho]] + \sum_p \text{th}\left(\frac{\gamma \omega_n}{k_B T}\right) J_{p \rightarrow p}(\omega^p) [U_\ell^p \{U_\ell^{p\dagger}, \rho\}] \right\} \quad (\text{III.39})$$

Cette équation est valable pour une interaction tensorielle de degré ℓ quelconque. Dans le cas d'un champ fluctuant, il vient en représentation normale

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_k^{q*}}{dt} = & - i q \omega_n \sigma_k^{q*} - \left[\frac{k(k+1)}{2T_1} + q^2 \left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right) \right] \sigma_k^{q*} \\ & + \frac{1}{T_1} \text{th}\left(\frac{\gamma \omega_n}{2k_B T}\right) \left[- f_k \sigma_{k-1}^{q*} + g_k \sigma_{k+1}^{q*} \right] \end{aligned} \quad (\text{III.40})$$

$$\text{avec } f_k = \frac{(k+1)\sqrt{k^2 - q^2}}{2} \left[\frac{(2I+1+k)(2I+1-k)}{(2k+1)(2k-1)} \right]^{1/2} \quad g_k = \frac{k\sqrt{(k+1)^2 - q^2}}{2} \left[\frac{(2I+2+k)(2I-k)}{(2k+3)(2k+1)} \right]^{1/2}$$

Lorsque $\hbar\omega_n \ll k_B T$, cette équation se réduit bien à (III.11). On note sur (III.40) l'apparition de couplages entre σ_k^q de k différents. Il en résulte que la relaxation d'un σ_k^q donné n'est plus représentée par une simple exponentielle, mais par une combinaison linéaire d'exponentielles dont les constantes de temps dépendent de T_1, T_2 et I et dont les coefficients multiplicatifs dépendent des conditions initiales (35). T_1 garde la même définition qu'à haute température mais n'a plus de signification physique immédiate.

Dans la pratique, en l'absence de radiofréquence, seules sont nulles les quantités σ_k^0 . On peut alors raisonner en termes de populations et il est facile de montrer que les équations (III.40) sont strictement équivalentes aux équations :

$$\frac{dp_m}{dt} = - (W_{m,m-1} + W_{m,m+1}) p_m + W_{m+1,m} p_{m+1} + W_{m-1,m} p_{m-1} \quad (\text{III.41})$$

où

$$W_{m,m+1} = \frac{1}{T_1^+} |\langle m+1 | I^+ | m \rangle|^2 \quad W_{m,m-1} = \frac{1}{T_1^-} |\langle m-1 | I^- | m \rangle|^2$$

$$T_1^+ \text{ et } T_1^- \text{ sont tels que } \frac{1}{T_1} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1^+} + \frac{1}{T_1^-} \right) \text{ et } \frac{T_1''}{T_1^+} = \exp \left(- \frac{\hbar\omega_n}{k_B T} \right)$$

Comme les quantités σ_k^q , les populations p_m s'écrivent

$$p_m = p_{m0} + \sum_{k=1}^{2I} a_k e^{-\lambda_k t} \quad (\text{III.42})$$

Les constantes de temps λ_k se calculent aisément si $T = 0$, il vient :

$$\lambda_m = |\langle m+1 | I^+ | m \rangle|^2 / T_1 \quad (\text{III.43})$$

Il reste à connaître la variation de T_1 avec la température. Dans le cas où le champ fluctuant provient de l'interaction du noyau avec les électrons de conduction, on peut montrer à l'aide du théorème de fluctuation dissipation (36) que

$$\frac{1}{T_1} = C \coth \left(\frac{\hbar\omega_n}{2k_B T} \right) \sum_{q,q'} \text{Im } \chi(q, q', \omega_n) \quad (\text{III.44})$$

où C est une constante et $\sum_{q,q'} \text{Im } \chi(q, q', \omega_n)$ est la partie imaginaire de la susceptibilité transversale électronique au site de l'impureté. Cette susceptibilité étant pratiquement indépendante de la température, $1/T_1$ prend la forme

$$\frac{1}{T_1} = \frac{\hbar\omega_n}{2\gamma_k k_B} \coth \left(\frac{\hbar\omega_n}{2k_B T} \right) \quad (\text{III.45})$$

qui lorsque $\hbar\omega_n \ll 2k_B T$ se réduit à $T_1 T = c_k$ (loi de Korringa)

C H A P I T R E I V

E F F E T S D E L A R A D I O F R E Q U E N C E

Nous nous proposons d'étudier dans ce chapitre l'effet de la radiofréquence sur le niveau nucléaire I (Fig. II.1) en l'absence et en la présence de relaxation. Nous allons montrer que :

- en l'absence de relaxation (c'est à dire si la durée de vie du niveau est courte par rapport au temps de relaxation) l'anisotropie γ observée tend vers une limite finie non nulle ("cœur dur") quand l'intensité du champ de radiofréquence tend vers l'infini.

- au contraire, si la durée de vie du niveau I est longue par rapport au temps de relaxation (il s'agit alors essentiellement d'expériences d'orientation nucléaire) la saturation radiofréquence annule tous les σ_k^q et détruit complètement l'anisotropie du rayonnement γ émis.

Ces conclusions permettent de préciser la nature des conditions initiales dans les expériences où l'on observe la réapparition de l'anisotropie γ après suppression de la radiofréquence.

I - E F F E T D E L A R A D I O F R E Q U E N C E D A N S L E S E X P E R I E N C E S D E C O R R E L A T I O N S A N G U L A I R E S P E R T U R B E E S .

1°/ Hamiltonien de couplage entre le noyau dans l'état intermédiaire I et le champ de radiofréquence.

Nous supposons le noyau soumis à un champ de radiofréquence ^{tournant} (à une fréquence voisine de la fréquence de Zeeman qui caractérise l'état intermédiaire)

$$(H_{RF})_x = H_1 \cos \omega t, \quad (H_{RF})_y = H_1 \sin \omega t$$

La somme des hamiltoniens Zeeman et radiofréquence agissant sur l'état I est alors de la forme

$$\mathcal{H}_z + \mathcal{H}_{RF} = \hbar \omega_n I_z + \frac{\hbar \omega_1}{2} (I_+ e^{-i\omega t} + I_- e^{+i\omega t}) \quad (IV.1)$$

et l'équation d'évolution de la matrice densité s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_k^{q*}}{dt} = & -iq\omega_n \sigma_k^{q*} - \frac{i\omega_1}{2} \sqrt{k(k+1)-q(q-1)} e^{-i\omega t} \sigma_k^{q-1*} \\ & - \frac{i\omega_1}{2} \sqrt{k(k+1)-q(q+1)} e^{+i\omega t} \sigma_k^{q+1*} \end{aligned} \quad (IV.2)$$

Passage dans le référentiel tournant OXYZ : si l'on pose $\sigma_k^{q*} = e^{-iq\omega t} \theta_k^{q*}$, ceci devient :

$$\begin{aligned} \frac{d\theta_k^{q*}}{dt} = & -iq(\omega_n - \omega) \theta_k^{q*} - \frac{i\omega_1}{2} \sqrt{k(k+1)-q(q-1)} \theta_k^{q-1*} \\ & - \frac{i\omega_1}{2} \sqrt{k(k+1)-q(q+1)} \theta_k^{q+1*} \end{aligned} \quad (IV.3)$$

Dans ce référentiel l'équation d'évolution est la même que si le noyau était soumis à l'hamiltonien statique

$$\mathcal{H}_{\text{eff}} = \hbar (\omega_n - \omega) I_z + \hbar \omega_1 I_x$$

2°/ Application : effet de la radiofréquence sur les mesures de corrélations angulaires perturbées.

Supposons d'abord qu'il n'y ait pas de relaxation. Les équations ci-dessus montrent que la matrice densité θ est la solution de

$$\frac{d\theta}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\mathcal{H}_{\text{eff}}, \theta] \quad (IV.4)$$

$\mathcal{H}_{\text{eff}}$ étant statique, ceci s'intègre aisément :

$$\begin{aligned} \theta(t) = & \exp \left[-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_{\text{eff}} (t-t') \right] \theta(t') \exp \left[+\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_{\text{eff}} (t-t') \right] \\ \theta_k^{q*}(t) = & \sum_{k',q'} \text{Trace} \left\{ T_k^{q*} \exp \left[-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_{\text{eff}} (t-t') \right] T_{k'}^{q'} \right. \\ & \times \exp \left[+\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_{\text{eff}} (t-t') \right] \left. \right\} \theta_{k',q'}^*(t') \end{aligned} \quad (IV.5)$$

$\mathcal{H}_{\text{eff}}$ est de la forme :

$$\mathcal{H}_{\text{eff}} = \hbar (\omega_n - \omega) I_z + \hbar \omega_1 I_x = \hbar \omega_{\text{eff}} \vec{n} \cdot \vec{I} \quad (\text{IV.5 bis})$$

avec

$$\omega_{\text{eff}} = \sqrt{(\omega_n - \omega)^2 + \omega_1^2}$$

$$n_x = \sin \alpha, \quad n_y = 0, \quad n_z = \cos \alpha$$

$$\omega_n - \omega = \omega_{\text{eff}} \cos \alpha$$

$$\omega_1 = \omega_{\text{eff}} \sin \alpha$$

soit $d(\alpha)$ la rotation autour de OY qui amène Oz en coïncidence avec $\vec{n}$. On démontre aisément à partir de (IV.5.) que:

$$\theta_k^{q*}(t) = \sum_{q''q'} d_{qq''}^k(\alpha) \exp[-iq'' \omega_{\text{eff}}(t-t')] d_{q''q'}^{-lk} \theta_k^{q'}(t')$$

d'où

$$\sigma_k^{q*}(t) = e^{-iq\omega t} \sum_{q''q'} d_{qq''}^k(\alpha) \exp[-iq'' \omega_{\text{eff}}(t-t')] d_{q''q'}^{-lk} e^{+iq'\omega t'} \sigma_k^{q'}(t') \quad (\text{IV.6.})$$

Le facteur de perturbation s'obtient par comparaison de (IV.6) et (II.35)

$$G_{k'k}^{q'q}(t, t') = e^{-i(q-q')\omega t} e^{-iq'\omega(t-t')} \sum_{q''} d_{qq''}^k(\alpha) [\exp(-iq'' \omega_{\text{eff}}(t-t'))] d_{q''q'}^{-lk} \quad (\text{IV.7.})$$

D'où pour les corrélations intégrales

$$\bar{G}_{k'k}^{q'q} = \delta_{k'k} e^{-i(q-q')\omega t} \sum_{q''} d_{qq''}^k(\alpha) d_{q''q'}^{-lk}(\alpha) \frac{1/\tau_n}{\frac{1}{\tau_n} + iq'\omega + iq'' \omega_{\text{eff}}} \quad (\text{IV.8.})$$

Supposons maintenant que l'on soit au voisinage de la résonance et que le champ de radiofréquence devienne très grand ($\alpha \approx \frac{\pi}{2}$; $\omega_{\text{eff}} \sim \omega_1 \rightarrow \infty$); seuls subsistent dans G les termes $q'' = 0$ et l'on a

$$\left[\bar{G}_{k'k}^{q'q} \right]_{\text{C.D.}} = \delta_{k'k} e^{-i(q-q')\omega t} \frac{\sqrt{(k-q')!}}{(k+q')!} \frac{\sqrt{(k-q)!}}{(k+q)!} P_k^q(0) P_k^{q'}(0) \frac{1/\tau_n}{\frac{1}{\tau_n} + iq'\omega} \quad (\text{IV.9.})$$

où les P_k^q sont des polynômes de Legendre associés. On sait que les $P_k^q(0)$ ne sont différents de zéro que si $k + q$ est pair. En pratique seuls sont observables expérimentalement les termes de k pair et non modulés. Il faut donc $q = q'$ pair alors :

$$[\bar{G}_{kk}^{qq}]_{C.D} = \frac{(k-q)!}{(k+q)!} [P_k^q(0)]^2 \frac{1/\tau_n}{\frac{1}{\tau_n} + iq\omega} \quad (IV.10)$$

Par conséquent dans les expériences de corrélations intégrales, les quantités $\bar{G}_{kk}^{qq}$ avec q pair (par exemple $\bar{G}_{22}^{00}$, $\bar{G}_{22}^{22}$..) présentent un "coeur dur" lorsque le champ de radiofréquence devient très grand. L'existence de coeurs durs avait été prévue par Matthias⁽⁶⁹⁾.

Cas particulier : $q = 0$. D'après (70), p. 180 eq. 19

$$[P_k^0(0)]^2 = g_m^2 = \left[\frac{\Gamma(1/2 + k/2)}{\Gamma(1/2)} \frac{1}{(k/2)!} \right]^2 \quad (IV.11)$$

où $\Gamma(x)$ est la fonction gamma; $[P_2^0(0)]^2 = \frac{1}{4}$; $[P_4^0(0)]^2 = \frac{9}{64}$ etc...

3°/ Effet de la relaxation.

Supposons pour simplifier une relaxation isotrope : elle a pour effet d'ajouter au second membre de l'équation d'évolution des σ_k^{q*} un terme $-\lambda_k \sigma_k^{q*}$. Ceci introduit dans l'expression (IV.5) de G un facteur multiplicatif $e^{-\lambda_k(t-t_0)}$. Par suite, au dénominateur de $\bar{G}$, $\frac{1}{\tau_n}$ est remplacé par $\frac{1}{\tau_n} + \lambda_k$. En particulier :

$$[\bar{G}_{kk}^{qq}]_{C.D} = \frac{(k-q)!}{(k+q)!} [P_k^q(0)]^2 \frac{1/\tau_n}{\frac{1}{\tau_n} + \lambda_k + iq\omega} \quad (IV.12)$$

Lorsque les temps de relaxation dans l'état intermédiaire deviennent courts par rapport à la durée de vie de cet état, $\lambda_k \gg 1/\tau_n$ et l'on voit que $[\bar{G}_{kk}^{qq}]_{C.D}$ tend vers 0. Nous obtiendrons ci-dessous des résultats analogues pour les expériences d'orientation nucléaire mettant en jeu un état intermédiaire transitoire.

II - EFFET DE LA RADIOFREQUENCE DANS LES EXPERIENCES D'ORIENTATION NUCLEAIRE.

1°/ Effet de la radiofréquence en l'absence de relaxation.

Il s'agit d'expériences dans lesquelles l'état intermédiaire I a une courte durée de vie. La matrice densité des noyaux à leur arrivée dans I est de la

forme :

$$[\sigma_k^{q*}(t')]_{in} = \delta_{q0} S_k^O \quad (IV.13)$$

où les S_k^O peuvent être obtenus à partir des formules (II.38) et (II.34). Par ailleurs, on n'observe que la partie non modulée du rayonnement $\vec{k}_2$ émis vers I_f . Compte tenu de la relation

$$[\sigma_{kq}^*(t, t')]_{em} = \sum_{k', q'} G_{k'k}^{q'q}(t, t') [\sigma_{k'q'}^*(t')]_{in}$$

et des résultats obtenus au paragraphe précédent pour G , seuls doivent donc être conservés dans l'équation (IV.6) les termes $[\sigma_k^{O*}(t, t')]_{em}$, termes pour lesquels

$$[\sigma_k^{O*}(t, t')]_{em} = G_{kk}^{OO}(t, t') S_k^O \quad (IV.14)$$

Finalement l'anisotropie du rayonnement γ est donnée par ($\Gamma_2 = 1/\tau_n$)

$$W(\theta_2, \phi_2) d\psi_2 = d\psi_2 \sqrt{2I+1} \Gamma_1 \sum_k F_2(k) P_k(\cos \theta_2) S_k^O \times \sum_{q''} \frac{(k-q'')!}{(k+q'')!} [P_k^{q''}(\alpha)]^2 \frac{1/\tau_n}{\frac{1}{\tau_n} + iq''\omega_{eff}} \quad (IV.15)$$

comme pour les expériences de corrélations angulaires perturbées, lorsque le champ de radiofréquence devient très grand, il subsiste un "cœur dur", donné par

$$W(\theta_2, \phi_2) d\psi_2 = d\psi_2 \sqrt{2I+1} \Gamma_1 \sum_k F_2(k) P_k(\cos \theta_2) S_k^O \left[\frac{\Gamma(\frac{1}{2} + \frac{k}{2})}{\Gamma(\frac{1}{2})(\frac{k}{2})!} \right]^2 \quad (IV.16)$$

Ce "cœur dur" avait été prévu par Shirley⁽⁴⁰⁾.

2°/ Effet de la radiofréquence en présence de relaxation*.

2.1. Généralités.

L'anisotropie du rayonnement γ est une combinaison linéaire des quantités :

$$u_k^{q*} = \Gamma_2 \int_{-\infty}^t e^{-\Gamma_2(t-t')} [\sigma_k^{q*}(t, t')]_{em} dt' \quad (IV.17)$$

où $[\sigma_k^{q*}(t, t')]_{em}$ est ce qu'est devenue à l'instant t la matrice densité σ qui à l'instant initial était égale à

$$[\sigma_k^{q*}(t')]_{in} = \delta_{q0} S_k^O$$

* Nous supposons que l'application de la radiofréquence ne modifie pas la forme des équations de relaxation.

Rappelons que σ_0^0 est une constante du mouvement qui ne dépend que de l'alimentation radiative de l'état intermédiaire $\sigma_0^0 = S_0^0$. Ceci dit, pour $k \neq 0$ l'équation d'évolution des σ_k^q s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_k^{q*}}{dt} = & -iq\omega_n \sigma_k^{q*} - \frac{i\omega_1}{2} \sqrt{k(k+1)-q(q-1)} e^{-i\omega t} \sigma_k^{q-1*} - \frac{i\omega_1}{2} \sqrt{k(k+1)-q(q+1)} e^{+i\omega t} \sigma_k^{q+1*} \\ & - \left[\frac{k(k+1)}{2T_1} + q^2 \left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right) \right] \sigma_k^{q*} + \frac{1}{T_1} \text{th} \left(\frac{N\omega_n}{2k_B T} \right) \left[-f_k \sigma_{k-1}^{q*} + g_k \sigma_{k+1}^{q*} \right] \end{aligned} \quad (\text{IV.18})$$

ou encore schématiquement

$$\frac{d\sigma_k^{q*}}{dt} = -iq\omega_n \sigma_k^{q*} - a_k^q \sigma_k^{q*} - b_k^q \sigma_{k+1}^{q*} - c_k^q \sigma_{k-1}^{q*} - v\omega_1 e^{-i\omega t} \sigma_k^{q-1*} - w\omega_1 e^{+i\omega t} \sigma_k^{q+1*}$$

On note l'apparition dans l'équation relative à $k = 1$, $q = 0$ d'un terme en $c_1^0 \sigma_0^{0*}$ qui va jouer le rôle de terme source pour le système différentiel considéré ($k \neq 0$).

Passage dans le référentiel tournant : si l'on pose $\sigma_k^{q*} = e^{-i\omega t} \theta_k^{q*}$

$$\begin{aligned} \frac{d\theta_k^{q*}}{dt} + [iq(\omega_n - \omega)\theta_k^{q*}] + [a_k^q \theta_k^{q*} + b_k^q \theta_{k+1}^{q*} + c_k^q (1 - \delta_{k,1} \delta_{q,0}) \theta_{k-1}^{q*}] \\ + [v\omega_1 e^{-i\omega t} \theta_k^{q-1*} + w\omega_1 e^{+i\omega t} \theta_k^{q+1*}] = -\delta_{k,1} \delta_{q,0} c_1^0 \sigma_0^0 \end{aligned} \quad (\text{IV.19})$$

Nous allons maintenant adopter des notations matricielles de façon à alléger la suite des calculs. Nous définirons des matrices colonnes :

$$U \leftrightarrow u_k^{q*}, \quad \Sigma \leftrightarrow \sigma_k^{q*}, \quad \theta \leftrightarrow \theta_k^{q*}, \quad S \leftrightarrow [\sigma_k^{q*}]_{in}, \quad C \leftrightarrow \text{terme source} \quad (\text{IV.20})$$

dont chaque élément i correspond à un couple k, q déterminé suivant la convention décrite sur la Fig. (IV.1). Dans S , seuls sont nuls les éléments correspondant aux S_{kk}^0 ($k \neq 0$); quant à C , son seul élément non nul est celui de la deuxième ligne.

Par ailleurs, aux trois crochets figurant dans l'équation (IV.19) peuvent être associées des matrices carrées : $\Omega(\omega_n - \omega)$ (précession), A (relaxation) $\omega_1 B$ (radiofréquence) agissant sur Θ . Nous poserons

$$M = \Omega(\omega_n - \omega) + A + \omega_1 B \quad (IV.21)$$

Les éléments de ces matrices sont repérés par deux indices i et j suivant une convention identique à celle que nous avons adoptée pour les matrices colonnes.

L'équation d'évolution de Θ s'écrit donc

$$\frac{d\Theta}{dt} + M \Theta = C \quad (IV.22)$$

d'où (méthode de variation des constantes)

$$\Theta = e^{-Mt} \Theta_0 + \int_{t'}^t e^{-M(t-\tau)} C d\tau \quad (IV.23)$$

Pour déterminer la constante d'intégration Θ_0 , on écrit qu'à l'instant t' la matrice $\sum = e^{-i\Omega(\omega)t'} \Theta$ doit satisfaire la condition initiale

$$\sum(t') = S \quad (IV.24)$$

On trouve alors que

$$\sum(t, t') = e^{-i\Omega(\omega)t} e^{-M(t-t')} e^{+i\Omega(\omega)t'} S + e^{-i\Omega(\omega)t} \int_{t'}^t e^{-M(t-\tau)} C d\tau \quad (IV.25)$$

Compte tenu de la forme particulière de S en orientation nucléaire*

$$e^{-i\Omega(\omega)t'} S = S \quad (IV.26)$$

Par ailleurs il est possible d'intégrer le deuxième terme de (IV.25); il vient :

$$\sum(t, t') = e^{-i\Omega(\omega)t} e^{-M(t-t')} (S - M^{-1} C) + e^{-i\Omega(\omega)t} M^{-1} C \quad (IV.27)$$

* Dans une expérience de corrélation angulaire, S serait une matrice colonne dont tous les éléments seraient égaux à 1, C serait nulle et dans M (eq. IV.21) la matrice A se réduirait aux termes a_{kk}^q .

Matrice $[M_{kk}]$ ($k=2$)

Matrice M_{k_0} ($k_0 = 3, l = 3/2$)

Matrice C

11

Matrice M_{k0+1}

Matrice M^{-1}_{k0+1}

Figure : IV. 1

d'où le résultat final

$$U \equiv \Gamma_2 \int_{-\infty}^t e^{-\Gamma_2(t-t')} \sum (t, t') dt' e^{-i\Omega(\omega)t} \Gamma_2 [\Gamma_2 I + M]^{-1} [S - M^{-1}C] + e^{-i\Omega(\omega)t} [M^{-1}C] \quad (IV.23)$$

Notons que cette formule est aussi valable en l'absence de radiofréquence ($\omega_1 = 0$, $\omega = 0$)

Discussion.

a) Les parties réelles des éléments de matrice de M sont de l'ordre de l'inverse des temps de relaxation dans l'état intermédiaire I. Si ces temps de relaxation sont très courts par rapport à la durée de vie de I, le premier terme de U est négligeable par rapport au second et

$$U \approx e^{-i\Omega(\omega)t} [M^{-1}C] \quad (IV.29)$$

On note que U ne dépend plus des conditions initiales (S), ce qui est physiquement raisonnable.

En l'absence de radiofréquence, l'anisotropie γ est égale à celle que l'on obtiendrait directement à partir de la matrice densité de I à l'équilibre thermique. En présence de radiofréquence, U se déduit de la solution en régime permanent du système (IV.18).

b) Saturation radiofréquence

Comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, la matrice $M^{-1}C$ tend vers 0 quand ω_1 tend vers l'infini. Dans ces conditions

$$U \rightarrow e^{-i\Omega(\omega)t} \Gamma_2 [\Gamma_2 I + M]^{-1} S \quad (IV.30)$$

La matrice $N^{-1}S \equiv [\Gamma_2 I + M]^{-1}S$ a les mêmes propriétés que la matrice $M^{-1}S$ dont nous verrons qu'elle possède un "coeur dur" quand ω_1 tend vers l'infini. Ce "coeur dur" tend vers zéro quand la relaxation devient rapide par rapport à la durée de vie (cf. corrélations angulaires perturbées)

Par suite, l'application d'un champ radiofréquence saturant à un niveau de durée de vie longue par rapport aux temps de relaxation, a pour effet de détruire complètement l'anisotropie du rayonnement γ émis à partir de ce niveau. Si l'on supprime la radiofréquence, la condition initiale sur les σ_k^{q*} au moment de la coupure est :

$$\sigma_k^{q*} = 0 \text{ quels que soient } k \text{ et } q \text{ différents de zéro} \quad (IV.31)$$

Ces résultats peuvent paraître évidents; en fait il ne semble pas qu'ils aient jamais été démontrés rigoureusement jusqu'à présent. En effet les calculs faits en vue d'interpréter les expériences de R.M.N. supposent $|\hbar\omega_n/k_B T| \ll 1$; dans ce cas les relaxations des ρ_k^q de k différents sont découplées; la R.M.N. n'est sensible qu'à l'aimantation nucléaire, décrite par les ρ_1^q pour lesquels on utilise une équation de relaxation du type équation de Bloch. Pour d'autres types d'expérience, on se borne à faire des raisonnements basés sur des considérations énergétiques et à dire que le champ de radiofréquence a pour effet "d'égaliser les populations".

2.2. Etude des matrices M et M^{-1}

Pour simplifier, nous nous bornerons au cas de la résonance exacte : $\omega = \omega_n$

2.2.1. Notations. (Fig. IV.1)

Les matrices M associées aux différents spins nucléaires I ont toutes la même structure. La matrice correspondant à un spin I donné sera repérée par la plus grande valeur de k correspondant à ce spin, soit $k_0 = 2I$.

Les matrices M_{k_0} peuvent être décomposées en sous-matrices $\begin{bmatrix} M_{kk}^0 \end{bmatrix}^k$ repérées par les valeurs de k . On distingue :

- le long de la diagonale, des matrices carrées $\begin{bmatrix} M_{kk}^0 \end{bmatrix}^k$ dont les éléments diagonaux sont de l'ordre de λ , inverse d'un temps de relaxation, et les éléments adjacents à la diagonale d'ordre ω_1 (qui caractérise la grandeur du champ de radiofréquence). Ces éléments ne dépendent pas de I

- adjacents à la diagonale, des matrices rectangulaires $\begin{bmatrix} M_{k,k\pm 1}^0 \end{bmatrix}^k$ qui possèdent un certain nombre d'éléments non nuls d'ordre $\lambda \text{th} \left(\frac{\hbar\omega_n}{2k_B T} \right)$ ($\sim \lambda$ dans les expériences d'orientation nucléaire). Ces éléments dépendent de I .

- enfin des matrices $\begin{bmatrix} M_{kk'}^0 \end{bmatrix}^k$ avec $k-k' \neq 0, \pm 1$ qui sont identiquement nulles.

On note par ailleurs que si la matrice M_{k_0+1} est décomposée en sous matrices A, B, C, D de la façon indiquée sur la figure IV.1 (avec $D = \begin{bmatrix} M_{k_0+1, k_0+1}^0 \end{bmatrix}^{k_0+1}$), la sous-matrice A_{k_0+1} a la même forme que la matrice M_{k_0} .

2.2.2. Etude de la matrice M^{-1} .

Nous nous proposons d'étudier le comportement de la matrice M^{-1} quand ω_1/λ tend vers l'infini. Plus précisément nous désirons savoir si $M^{-1}S$ et $M^{-1}C$ possèdent des éléments non nuls ("coeur dur") et en outre déterminer éventuellement la dépendance en ω_1 des éléments qui tendent vers zéro.

Les démonstrations se font par récurrence; les théorèmes utilisés et les étapes des calculs figurent dans l'appendice I; nous nous bornerons ici à donner les principaux résultats.

a) Préliminaire : propriétés des matrices $[M_{kk}]$ (dimension $(2k+1) \times (2k+1)$)
Les éléments de ces matrices seront repérés par les indices μ et ν

$$\mu(k, q) = k + 1 - q$$

On a

$$\det [M_{kk}] \sim \omega_1^{2k} \quad (\det = \text{déterminant}) \quad (\text{IV.32})$$

- soit $[P_{\mu\nu}]$ la matrice obtenue en barrant la $\mu^{\text{ième}}$ ligne et la $\nu^{\text{ième}}$ colonne de $[M_{kk}]$

$$\text{si } \mu, \nu \text{ sont pairs : } \det [P_{\mu\nu}] \sim \omega_1^{2k-2}$$

$$\text{si } \mu, \nu \text{ sont de parités opposées : } \det [P_{\mu\nu}] \sim \omega_1^{2k-1} \quad (\text{IV.33})$$

$$\text{si } \mu, \nu \text{ sont impairs } \det [P_{\mu\nu}] \sim \omega_1^{2k}$$

application à l'inverse de $[M_{kk}]$

$$\text{si } \mu, \nu \text{ sont pairs } [M_{kk}^{-1}]_{\mu\nu} \sim \omega_1^{-2} \quad (\text{IV.34})$$

$$\text{si } \mu, \nu \text{ sont de parités opposées } [M_{kk}^{-1}]_{\mu\nu} \sim \omega_1^{-1}$$

$$\text{si } \mu, \nu \text{ sont impairs } [M_{kk}^{-1}]_{\mu\nu} \sim \text{constante}$$

b) Propriétés des matrices $M_{k_0}^{-1}$ (dimension $k_0 (k_0+2) \times k_0 (k_0+2)$)

Les éléments de ces matrices sont repérés par les indices i et j

$$i(k, q) = k^2 - 1 + (k + 1 - q) \quad (\text{IV.35})$$

On peut montrer que quand ω_1/λ tend vers l'infini

$$[M'_{kk}] \sim [M_{kk}^{-1}]$$

$$[M'_{kk}] \rightarrow 0 \text{ si } k \neq k' \quad (\text{IV.36})$$

- pour les éléments (i,2) de $M_{k_0}^{-1}$ (qui interviennent dans le calcul de $M^{-1}C$)

$$(M_{k_0}^{-1})_{i2} \sim \omega_1^{-k} \text{ si } i \text{ correspond à } k \text{ et } q \text{ de même parité} \quad (\text{IV.37})$$

$$(M_{k_0}^{-1})_{i2} \sim \omega_1^{-(k+1)} \text{ si } i \text{ correspond à } k \text{ et } q \text{ de parités opposées}$$

c) application : saturation radiofréquence d'un état de grande durée de vie

$$(1/\tau_n \ll 1)$$

$$U = e^{-i\Omega(\omega)t} M^{-1} C$$

donc

$$\begin{array}{l} u_k^{q*} \sim \omega_1^{-k} \text{ si } k \text{ et } q \text{ sont de même parité} \\ u_k^{q*} \sim \omega_1^{-(k+1)} \text{ si } k \text{ et } q \text{ sont de parités opposées} \end{array} \quad (\text{IV.38})$$

Pour $k = 1$ ces résultats sont en accord avec les équations de Bloch. En se servant d'une propriété particulière de la matrice M (appendice I) on peut calculer explicitement les quantités u_1^q :

$$u_1^{\pm 1} \sim \frac{i}{T_1 \omega_1} \sqrt{\frac{2I(I+1)}{3(2I+1)}} \text{th} \left(\frac{\hbar \omega_n}{2k_B T} \right) \quad (\text{IV.39})$$

$$u_1^0 \sim -\frac{1}{T_1 T_2 \omega_1^2} \sqrt{\frac{4I(I+1)}{3(2I+1)}} \text{th} \left(\frac{\hbar \omega_n}{2k_B T} \right)$$

Pour $k = 2$ il vient :

$$u_2^{\pm 2} \sim -\frac{\sqrt{6}}{24} \sqrt{\frac{(2I+3)(2I+2)2I(2I-1)}{5(2I+1)}} \frac{1}{T_1^2 \omega_1^2} \left(1 + \frac{3T_2}{2T_1} \right) \text{th}^2 \left(\frac{\hbar \omega_n}{2k_B T} \right) \quad (\text{IV.40})$$

$$u_2^{\pm 1} \sim +\frac{i\sqrt{6}}{24} \sqrt{\frac{(2I+3)(2I+2)2I(2I-1)}{5(2I+1)}} \frac{1}{T_1^2 \omega_1^3} \left(\frac{T_2}{T_1} - 4 \right) \left(\frac{1}{T_2} + \frac{3}{2T_1} \right) \text{th}^2 \left(\frac{\hbar \omega_n}{2k_B T} \right)$$

$$u_2^0 \sim +\frac{1}{24} \sqrt{\frac{(2I+3)(2I+2)2I(2I-1)}{5(2I+1)}} \frac{1}{T_1^2 \omega_1^2} \left[3 \frac{T_2}{T_1} - 10 \right] \text{th}^2 \left(\frac{\hbar \omega_n}{2k_B T} \right)$$

On note que tous les u_k^{q*} (ou σ_k^{q*}) tendent vers 0 (à l'exception, bien sûr, de σ_0^0)

d) application : saturation radiofréquence d'un état de durée de vie courte ou moyenne ($1/\tau_{\tilde{\nu}} \gg \lambda$)

$$U = e^{-i\Omega(\omega)t} \Gamma_2 [\Gamma_2 I + M]^{-1} S = e^{-i\Omega(\omega)t} \Gamma_2 N^{-1} S$$

La matrice N se déduit de M par addition de $1/\tau_n$ à tous les éléments diagonaux de M. Elle a donc les mêmes propriétés.

Puisque $[M'_{kk'}]$ et $[N'_{kk'}]$ tendent vers zéro si $k \neq k'$

$$[e^{i\Omega(\omega)t} \bar{U}]_{il} = \sum_{j \in k} \Gamma_2 N_{ij}^{-1} S_{jl} \quad (IV.41)$$

ou encore

$$e^{iq\omega t} u_k^{q*} (kq \leftrightarrow \mu) = \Gamma_2 \sum_{\nu} [N_{kk}^{-1}]_{\mu\nu} S_{k'}^{q'} (k'q' \leftrightarrow \nu) \quad (IV.42)$$

Seules sont différentes de zéro les quantités S_k^0 pour lesquelles $\nu = k+1$. Par ailleurs les seuls éléments finis de $[N_{kk}^{-1}]$ quand ω_1 tend vers l'infini sont ceux pour lesquels μ et ν sont impairs.

Pour que $\nu = k+1$ soit impair, il faut k pair; alors, pour que $\mu = k+1-q$ soit impair, il faut q pair.

Par conséquent seuls auront un "cœur dur" les u_k^{q*} de k et q pairs*. Ce

*"cœur dur" est donné par

$$(u_k^{q*})_{C.D} = e^{-iq\omega t} \Gamma_2 [N_{kk}^{-1}]_{\mu=k+q-1, \nu=k+1} S_k^0 \equiv e^{-iq\omega t} \Gamma_2 N_{C.D}^{-1} (k,q) S_k^0 \quad (IV.43)$$

$N_{C.D}^{-1} (k,q)$ ne dépend pas de I et son expression algébrique en fonction de T_1 et T_2 ne dépend pas de la température.

Remarquons que :

$$e^{-iq\omega t} \Gamma_2 N_{C.D}^{-1} (k,q) \equiv [\bar{G}_{kk}^{0q}]_{C.D} \quad (IV.44)$$

* Rappelons qu'en orientation nucléaire on ne peut de toute façon observer que les termes de k pair et non modulés ($q = 0$).

Il résulte des considérations du paragraphe 2 qu'en l'absence de relaxation ou si la relaxation est isotrope, les quantités $[G_{kk}^{0q}]_{C.D}$ non nulles sont celles pour lesquelles k et q sont pairs. Ce résultat est en accord avec ce que nous venons de trouver dans le cas le plus général.

Exemples.

Un calcul explicite montre que

$$(u_2^0)_{C.D} = \frac{1/\tau_n}{4(\frac{3}{T_2} + \frac{1}{\tau_n})} S_2^0 = \frac{1}{4(1 + \frac{3\tau_n}{T_2})} S_2^0 \quad (IV.45)$$

résultat qui, dans le cas isotrope ($T_2 = T_1$, $\lambda = \frac{3}{T_1}$), est en accord avec l'eq. (IV.45)

Lorsque la durée de vie de l'état intermédiaire τ_n est courte par rapport au temps de relaxation T_2

$$(u_2^0)_{C.D} \rightarrow \frac{1}{4} S_2^0$$

Lorsque τ_n devient grande par rapport à T_2

$$(u_2^0)_{C.D} \rightarrow 0$$

Comme nous l'avons déjà montré qualitativement. On peut d'autre part établir que

$$(u_2^{\pm 2*})_{C.D} = \sqrt{3/2} (u^0)_{C.D} e^{\mp 2i\omega t} \quad (IV.46)$$

Ces résultats ont été vérifiés par un calcul machine mettant en jeu la grosse matrice M , dans le cas d'un spin $I = 7/2$.

Remarque : Forme de raie.

Les formes de raies en l'absence de relaxation ont été étudiées par Shirley⁽⁷¹⁾. En présence de relaxation, des calculs à l'ordinateur montrent que les raies conservent une structure multipolaire intrinsèque.

C H A P I T R E V

ORIENTATION NUCLEAIRE

Principes et techniques expérimentales

I - GENERALITES -

Nous avons vu dans les chapitres précédents que la distribution angulaire de γ émis par un noyau orienté est anisotrope et s'écrit dans le cas général^(*) (II.4)

$$W(\theta, \phi) = \sum_{\substack{k \text{ pair} \\ -k \leq N \leq +k}} \sqrt{\frac{4\pi}{2k+1}} B_k^N U_k F_k Y_k^N(\theta, \phi)$$

$$\text{où } B_k^N = \sqrt{2I+1} \sum_{m'} \sigma_{mm'} \langle m' | T_k^{N*} | m \rangle$$

θ et ϕ sont les angles polaires que fait la direction d'observation avec les axes de coordonnées dont Oz est l'axe de quantification. Le plus souvent, le système physique a la symétrie axiale, et à l'équilibre thermique seuls sont différents de zéro les termes pour lesquels $q = 0$:

$$W(\theta) = \sum_{k \text{ pair}} B_k U_k F_k P_k(\cos \theta) \quad (\text{où } B_k = B_k^0) \quad (V.1)$$

Supposons les noyaux émetteurs soumis à l'hamiltonien statique

$\mathcal{H} = AT_k^0$, et appelons $\sigma = \exp(-\mathcal{H}/kT)$ leur matrice densité. Les coefficients B_k

s'écrivent

$$B_k = \sqrt{2I+1} \frac{\text{Trace}(\sigma T_k^0)}{\text{Trace } \sigma} \quad (V.2)$$

Soit en remplaçant $\mathcal{H}$ par son expression et en faisant l'approximation

$$\exp(-\mathcal{H}/kT) = 1 - \frac{\mathcal{H}}{kT} + \frac{\mathcal{H}^2}{2k^2T^2}$$

* Ainsi écrite, l'expression de W est normalisée de telle façon que $\int W d\Omega = 4\pi$.

$$B_k = \frac{1}{\sqrt{2I+1}} \left[-\frac{A}{kT} \text{Trace} (T_k^O, T_k^O) + \frac{A^2}{2k^2T^2} \text{Trace} (T_k^O, T_k^O, T_k^O) \right]$$

Les traces se calculent aisément compte tenu de la relation

$\text{Trace } T_k^O T_{k'}^O = \delta_{kk'}$, et il vient

$$B_k = \frac{1}{\sqrt{2I+1}} \left[-\frac{A}{kT} \delta_{kk'} + (-1)^{2I} \frac{A^2}{2k^2T^2} (2k'+1) \sqrt{2k+1} \begin{pmatrix} k' & k' & k \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} k' & k' & k \\ I & I & I \end{Bmatrix} \right] \quad (V.3)$$

Au premier ordre en $1/kT$, seul le terme B_k , est non nul. Pour obtenir un effet observable, il faut donc au moins que $A \sim kT$. Plusieurs méthodes expérimentales permettent de réaliser cette condition. Nous n'allons décrire dans les paragraphes suivants que trois méthodes particulières, seules utilisées dans le travail que nous présentons : la première utilise un champ magnétique, la deuxième un gradient quadrupolaire, la troisième les effets combinés d'un champ magnétique et d'un gradient quadrupolaire. Nous supposerons que dans chaque cas $\mathcal{H}$ a la symétrie axiale par rapport à l'axe Oz.

II - ORIENTATION NUCLAIRE MAGNETIQUE -

1/ Principe.

L'hamiltonien d'un noyau soumis à un champ magnétique H parallèle à Oz s'écrit :

$$\mathcal{H} = -\frac{\mu H}{I} I_z = -\sqrt{\frac{I(I+1)(2I+1)}{3}} \frac{\mu H}{I} T_1^O \quad (V.4)$$

Le champ magnétique va scinder le niveau de spin I en $2I+1$ sous-niveaux distants de $\mu H/I$ dont les populations respectives sont égales à

$$p_m = e^{-m\beta} / \sum_m e^{-m\beta} \text{ en posant } \beta = \mu H/IkT \quad (V.5)$$

Si $\beta \sim 1$, le niveau le plus peuplé sera le niveau $m = I$ et la polarisation des noyaux $B_1 = \sqrt{3/I(I+1)} \sum_m m p_m$ sera non nulle. En d'autres termes les spins nucléaires auront un sens et une direction privilégiée d'orientation.

Quels sont les ordres de grandeur du champ magnétique et de la température qu'impose la condition $\beta \sim 1$? Si $I = 1$ et $\mu = 1$, nous devons avoir $H/T \sim 3 \times 10^7$ gauss/ $^\circ K$, soit à $10^{-2} K$ un champ de 300 koe. De telles températures sont obtenues facilement par démagnétisation adiabatique d'un sel paramagnétique et un tel champ est de l'ordre des champs hyperfins H_{eff} observés pour la plupart des impuretés magnétiques

dissoutes dans un métal (ou même non magnétiques si le métal est ferromagnétique). L'observation de l'anisotropie du rayonnement γ émis par une telle impureté permet donc la mesure de μH_{eff} d'où, si μ est connu, l'on déduit la valeur de H_{eff} , et inversement la valeur de μ si H_{eff} est connu.

Remarque.

Notons que pour obtenir une orientation nucléaire observable dans un métal ferromagnétique, il faut polariser tous les domaines dans une direction unique, ce qui est réalisé quand on place l'échantillon dans un champ magnétique extérieur relativement faible (de l'ordre de $5 \cdot 10^3$ ce pour le fer, le cobalt et le nickel).

2/ Calcul des coefficients B_k dans un champ statique.

Lors de l'étude de la relaxation d'un spin nucléaire soumis d'une part à un champ statique H_0 et d'autre part à un champ fluctuant, nous avons vu que les coefficients B_k étaient reliés entre eux par l'équation d'évolution (III.40)

$$\frac{dB_k}{dt} = - \frac{k(k+1)}{2I_1} [B_k + \text{th} \frac{\beta}{2} (p(k) B_{k-1} - q(k) B_{k+1})]$$

où
$$p(k) = \left[\frac{(2I+1+k)(2I+1-k)}{(2k-1)(2k+1)} \right]^{1/2} \quad \text{et} \quad q(k) = p(k+1)$$

A l'équilibre thermique nous devons donc avoir

$$B_k + \text{th} \frac{\beta}{2} (p(k) B_{k-1} - q(k) B_{k+1}) = 0 \quad (\text{V.6})$$

relation qui doit être vérifiée également en l'absence de champ fluctuant. Elle nous permet de calculer tous les coefficients B_k par récurrence en fonction de B_0 et B_1 .

Or

$$B_0 = \sqrt{2I+1} \sum_m p_m \langle m | \frac{1}{\sqrt{2I+1}} | m \rangle = 1 \quad (\text{V.7})$$

$$B_1 = \sqrt{2I+1} \sum_m p_m \langle m | \frac{\sqrt{3} I_z}{\sqrt{I(I+1)(2I+1)}} | m \rangle = -\sqrt{\frac{3}{I(I+1)}} I B_I(\beta)$$

où $B_I(\beta)$ est la fonction de Brillouin (tabulée par Herpin, p. 132 (37)). On en déduit

$$B_2 = \sqrt{\frac{5}{(2I+3)(2I+1)}} \left[2 \sqrt{I(I+1)} - \frac{3 \coth \frac{\beta}{2}}{\sqrt{I(I+1)}} I B_I(\beta) \right] \quad (V.8)$$

expression qui, lorsque $\beta \ll 1$, se réduit à

$$B_2 \approx \frac{1}{6} \beta^2 \sqrt{\frac{1}{5} I(I+1)(2I+3)(2I-1)} \quad (V.9)$$

et qui lorsque $\beta \gg 1$ devient

$$B_2 \approx I(2I-1) / \sqrt{\frac{1}{5} I(I+1)(2I+3)(2I-1)} \quad (V.10)$$

Les coefficients B_k sont tabulés par Blin-Stoyle et Grace (38).

On note que :

- lorsque β est petit, B_2 qui est le premier terme observable en orientation nucléaire varie en $(1/kT)^2$

- le signe de l'effet ne dépend que des coefficients nucléaires et non du signe de H .

III - ORIENTATION NUCLEAIRE A L'AIDE D'UN GRADIENT QUADRUPOLAIRE ELECTRIQUE -

1/ Principe.

Nous nous limiterons au cas d'un gradient quadrupolaire axial. Le noyau est alors soumis à l'hamiltonien (I.12)

$$\mathcal{H} = P \left[I_z^2 - \frac{1}{3} I(I+1) \right] = \frac{\sqrt{I(I+1)(2I+1)(2I-1)(2I+3)}}{3\sqrt{5}} P T_2^0 \quad (V.11)$$

où P peut s'écrire $P = \frac{3e Q}{4I(2I-1)} \frac{\partial^2 V}{\partial z^2}$

V étant le potentiel électrique au noyau de moment quadrupolaire Q . Cet hamiltonien va lever la dégénérescence du niveau de spin I , les sous niveaux $|m\rangle$ se classant suivant la valeur de m^2 . Par conséquent les sous-niveaux de m opposés auront même énergie. On voit donc qu'à une température telle que $P \sim kT$, on obtient non pas une polarisation mais un alignement, situation où l'on a autant de noyaux pointant dans une direction que dans la direction opposée, soit $B_1 = 0$ mais $B_2 \neq 0$.

En outre on peut distinguer deux cas :

- $P > 0$ le sous niveau nucléaire fondamental est $m = 0$ ou $m = \pm 1/2$. On dit que l'alignement est planaire. Le signe de l'anisotropie observée est opposé à celui donné par une orientation magnétique.

- $P < 0$ le sous niveau nucléaire fondamental est $m = \pm I$, l'alignement est axial. Le signe de l'anisotropie est le même que celui donné par une orientation magnétique.

L'ordre de grandeur du gradient électrique nécessaire pour réaliser un tel alignement est d'au moins 10^{15} V/cm^2 .

2/ Calcul des coefficients B_k .

Aucune expression analytique des coefficients B_k n'est connue à ce jour. On les calcule donc sur ordinateur en utilisant leur formule de définition si $P \sim kT$.

Lorsque $P \ll kT$ on utilise la formule (V.3) :

$$B_2 \approx [I(I+1)(2I-1)(2I+3)]^{1/2} \left[-\frac{P}{3\sqrt{5}kT} + \left(\frac{P}{kT}\right)^2 \frac{\sqrt{5}(2I-3)(2I+5)}{630} \right] \quad (\text{V.12})$$

On remarque que B_2 croît linéairement avec $1/T$ et que son signe peut être positif ou négatif suivant celui de P .

Lorsque $P \gg kT$, B_2 tend vers les limites suivantes :

$$\text{a) } P > 0 \quad I \text{ entier } B_2 = -\sqrt{5I(I+1)} / \sqrt{(2I-1)(2I+3)} \quad (\text{V.13})$$

$$I \text{ demi-entier } B_2 = \sqrt{5} \left(\frac{3}{4} - I(I+1) \right) / \sqrt{I(I+1)(2I-1)(2I+3)} \text{ soit } B_2 < 0$$

b) $P < 0$ B_2 a même limite que dans le cas d'une orientation par un champ magnétique (V.10) (Il est donc de signe opposé au cas a).

IV - ORIENTATION NUCLEAIRE A L'AIDE D'EFFETS MAGNETIQUES ET QUADRUPOLAIRES COMBINES.

Nous supposons, afin de conserver la symétrie axiale, que le gradient quadrupolaire et le champ magnétique sont portés par le même axe, d'où

$$\mathcal{H} = -\frac{\mu H}{I} I_z + P \left[I_z^2 - \frac{1}{3} I(I+1) \right] \quad (\text{V.14})$$

Les sous-niveaux $|m\rangle$ sont des états propres du système et leur énergie est égale à

$$E(m) = -\frac{\mu H}{I} + P \left[m^2 - \frac{1}{3} I(I+1) \right]$$

A 0°K le seul état peuplé est $m = I$ si $P < 0$. Par contre si $P > 0$ on ne peut rien dire a priori, la valeur de m dans le niveau fondamental étant fonction de l'amplitude relative de P par rapport à H , ce qui conduit à des limites différentes des coefficients B_k .

En vue d'interpréter nos expériences sur ^{175}Yb , nous avons calculé B_2 numériquement dans le cas $I = 7/2$. Afin de pouvoir couvrir toutes les valeurs du rapport $PI/\mu H$, nous avons écrit l'hamiltonien du système sous la forme

$$\mathcal{H} = W \left[x \left(I_z^2 - \frac{1}{3} I(I+1) \right) + (1 - |x|) I_z \right] \quad (\text{V.15})$$

soit $\left| \frac{\mu H}{I} \right| = (1 - |x|) W$ et $P = xW$ où $-1 \leq x \leq +1$

D'où $x = \frac{P}{|P| + \left| \frac{\mu H}{I} \right|}$ et $W = \left| \frac{\mu H}{I} \right| + |P|$; on pose $\beta = \frac{W}{kT}$

Les résultats sont reportés sur la Fig. (V.1). On remarque que pour de faibles valeurs positives de x ($x = 0,1$ par exemple) l'anisotropie change de signe lorsque $1/T$ croît. Ceci était bien attendu, car nous avons vu que la contribution à B_2 due aux effets quadrupolaires est linéaire en $1/T$ et domine donc la contribution magnétique, qui n'est qu'en $(1/T)^2$ lorsque β est suffisamment petit. Nous verrons un exemple expérimental d'un tel changement de signe : ^{175}Yb dans l'ethylsulfate d'Ytterbium.

V - RESONANCE -

1/ Généralités.

Nous avons vu au chapitre IV que l'application d'un champ de radiofréquence résonnant sur des noyaux orientés détruit en partie ou complètement leur orientation et par conséquent provoque une destruction correspondante de l'anisotropie de leur émission γ . Cet effet a été observé pour la première fois en 1966 par Matthias et Holliday ⁽³⁹⁾ sur le Co^{60} dans le fer. Depuis lors de nombreux autres noyaux dilués dans des cristaux isolants ou dans des matrices ferromagnétiques ont été étudiés par cette technique.

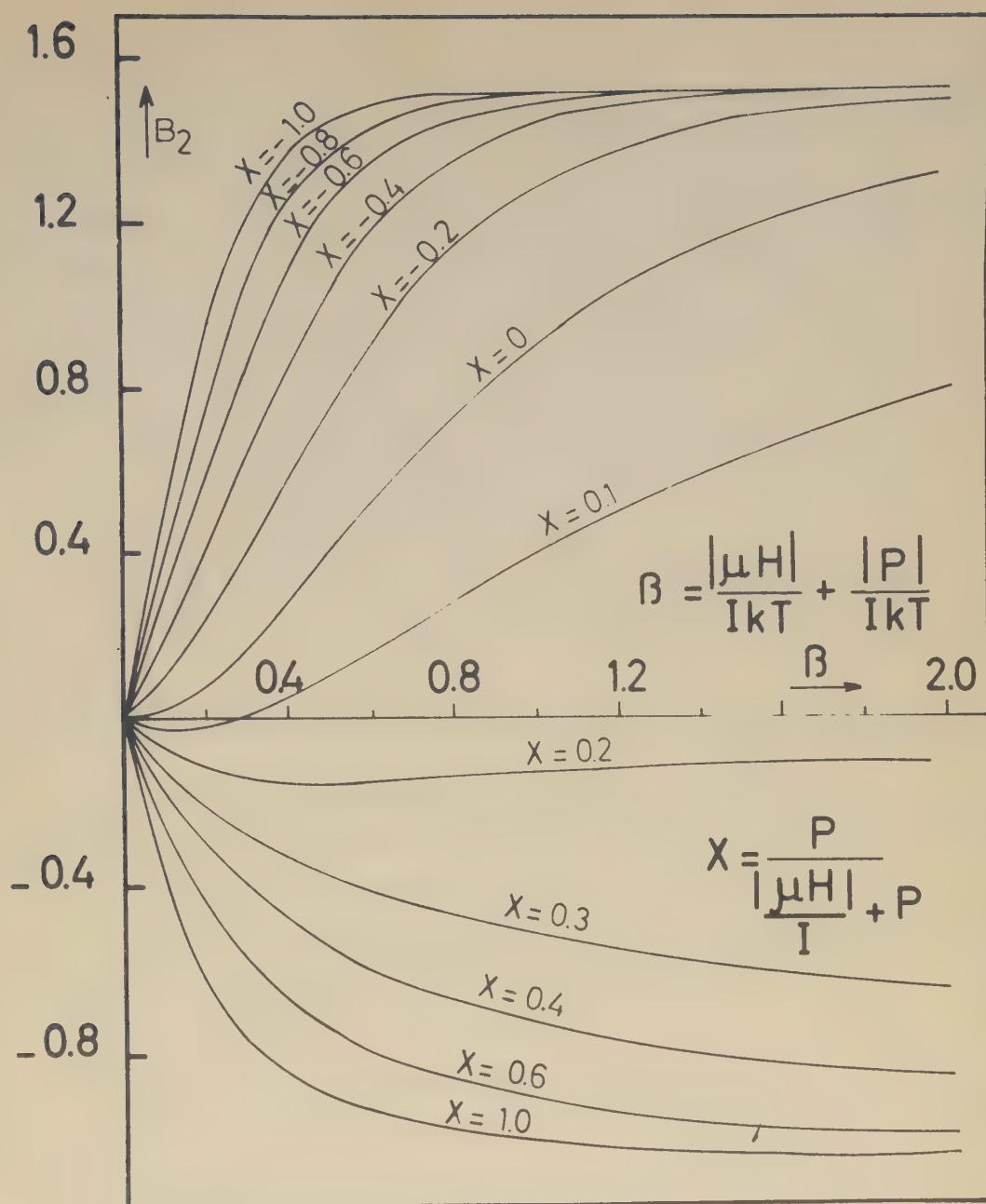


Figure V.1 - Variation de B_2 en fonction de β , calculée pour $I = 7/2$, lorsque le noyau est soumis à la fois à une interaction hyperfine magnétique μH et à une interaction hyperfine quadrupolaire P .

Cette technique cumule les avantages de la R M N classique (grande précision des mesures $\sim 5 \cdot 10^{-4}$) et ceux des méthodes radioactives (possibilité d'étudier des impuretés sous très grande dilution : inférieure à 10^{-6}). De plus, contrairement à l'orientation nucléaire classique, elle permet de mesurer l'interaction hyperfine indépendamment de tous les autres paramètres tels que ceux qui caractérisent les transitions β ou γ précédant la transition étudiée.

Par contre, une radiation de radiofréquence ν_{RF} ne pénétrant dans un métal que sur une longueur caractérisée par l'épaisseur de peau δ , il faut que tous les noyaux radioactifs d'intérêt soient au plus à la distance δ de la surface; soit par exemple si $\nu_{RF} = 250$ MHz, $\delta \approx 1 \mu$ dans le fer. Ceci oblige à utiliser :

- soit des échantillons très fins.

- soit un procédé qui ne crée d'activité que sur une profondeur au plus égale à δ . Nous verrons que l'implantation ionique est l'un de ces procédés.

2/ Résonance dans les métaux ferromagnétiques : condition d'observation.

Les largeurs $\Delta\nu$ des raies de résonance de noyaux inclus dans des métaux ferromagnétiques sont très grandes (~ 1 MHz). Cette largeur est due aux inhomogénéités du cristal et du champ démagnétisant ainsi qu'aux interactions entre spins si la concentration des impuretés est suffisamment élevée. Dans ces conditions l'observation d'un effet de résonance n'est possible qu'en modulant la radiation de radiofréquence envoyée sur l'échantillon.

En effet le champ de radiofréquence transversal H_1 est de l'ordre de 1 gauss (compte tenu du facteur d'amplification*). Il provoque un élargissement homogène local de ~ 1000 Hz, très grand devant celui dû au temps de relaxation de la terre rare ($\sim 10^{-2}$ Hz aux températures étudiées). L'application du champ H_1 à l'échantillon ne fait donc résonner qu'une proportion de noyaux égale à $10^3/10^6 = 10^{-3}$ ce qui conduit à un effet non mesurable.

Modulons la radiofréquence ν_{RF} par une fréquence ν_m :

* On sait qu'un champ transverse H_x , petit devant la somme H du champ longitudinal appliqué et du champ démagnétisant, va induire au noyau un champ H_1 égal à :

$$H_1 = H_x (1 + \eta) \text{ où } \eta = \frac{H_{hf}}{H} \quad H_{hf} \text{ étant le champ hyperfin. } (1 + \eta)$$

est le facteur d'amplification; il vaut 100 à 300 dans le fer.

$$\omega = \omega_{RF} (1 + m \cos \omega_m t) \quad (V.16)$$

soit

$$H_1(t) = H_1 \cos \left[\omega_{RF} t + m \frac{\omega_{RF}}{\omega_m} \sin \omega_m t \right]$$

$$= H_1 \left[J_0 \left(m \frac{\omega_{RF}}{\omega_m} \right) \cos \omega_{RF} t + \sum_{n \geq 1} J_n \left(m \frac{\omega_{RF}}{\omega_m} \right) \left[(-1)^n \cos(\omega_{RF} - n\omega_m)t + \cos(\omega_{RF} + n\omega_m)t \right] \right] \quad (V.17)$$

Si $\Delta\omega_{RF}$ est la demi plage de fréquence balayée par la modulation $m \frac{\omega_{RF}}{\omega_m} =$

$$\frac{\Delta\omega_{RF}}{\omega_{RF}} \times \frac{\omega_{RF}}{\omega_m} = \frac{\Delta\omega_{RF}}{\omega_m} .$$

Nous obtenons un spectre de fréquences ν_{RF} , $\nu_{RF} \pm \nu_m$, $\nu_{RF} \pm 2\nu_m$ etc.. s'étendant sur une plage dont la largeur en fréquence est de l'ordre de $2\Delta\omega_{RF}$. Le champ de radiofréquence associé à chaque raie a pour valeur $H_1 J_n (\Delta\omega_{RF}/\omega_m)$ expression qui est de l'ordre de $H_1 \sqrt{2\omega_m/\pi\Delta\omega_{RF}}$ si n est nettement plus petit que $\Delta\omega_{RF}/\omega_m$. Ce champ provoque un élargissement homogène de la raie correspondante de $\sim 1000 H_1 \sqrt{2\omega_m/\pi\Delta\omega_{RF}}$ (Hz) (où H_1 est exprimé en gauss). La fraction f de noyaux soumis à une radiation de résonance est donc de l'ordre de

$$f = 1000 \frac{\Delta\omega_{RF}}{\Delta\omega} H_1 \sqrt{\frac{1}{\pi\Delta\omega_{RF}}} \frac{\sqrt{2\omega_m}}{\omega_m} \text{ si } \Delta\omega_{RF} < \Delta\omega$$

$$= \frac{1000\sqrt{2}}{\sqrt{\pi}} H_1 \frac{1}{\Delta\omega} \sqrt{\frac{\Delta\omega_{RF}}{\omega_m}} \quad (V.18)$$

où $\Delta\omega$ est la largeur de raie expérimentale.

Pour obtenir un pourcentage maximum il faut $\Delta\omega_{RF} = \Delta\omega$ et ω_m minimum. Mais il faut aussi tenir compte du fait que le champ de radiofréquence local doit être suffisamment fort pour saturer la résonance. Si $T_1 = 100$ sec nous devons avoir $\omega_1 T_1 \gg 1$, d'où $\omega_1 \gg 10^{-2}$ ou $1000 H_1 \times \sqrt{2\omega_m/\pi\Delta\omega_{RF}} \gg 10^{-2}$ soit si $\Delta\omega_{RF} = 500$ kHz et $H_1 = 1$ oe, $\omega_m \gg 10^{-2}$. Pratiquement pour des raisons de stabilité de l'électro-

nique on prend $\omega_m = 200\pi$ et dans ces conditions $f \sim 0,1$, ce qui entraîne une variation de 10% dans l'anisotropie mesurée. Cet effet est maintenant mesurable. En fait on améliore la fraction f en utilisant une modulation linéaire plutôt que sinusoïdale.

VI - L'APPAREILLAGE -

L'appareillage que nous avons utilisé dans nos expériences d'orientation nucléaire est celui du "Clarendon Laboratory" (Oxford) Cet appareillage est d'un type tout à fait standard et a déjà été décrit en détail dans des travaux antérieurs ⁽⁴⁰⁾. Nous nous limiterons ici à rappeler la description du cryostat, du thermomètre et du système de comptage.

1/ Le cryostat.

C'est un cryostat à démagnétisation adiabatique d'un sel paramagnétique. La désaimantation s'effectue à partir d'un champ magnétique de 30 koe, produit par une bobine de cuivre extérieure au cryostat dans laquelle passe un courant de 3.500 A. La température du sel avant la désaimantation est de 1,2°K.

Deux types de sels sont utilisés

a) l'alun de chrome et de potassium $(CrK (SO_4)_2 \cdot 12 H_2O)$ permet de maintenir une température de l'ordre de 0,01°K pendant quelques heures.

b) le nitrate de magnésium et de cérium qui permet de maintenir une température de l'ordre de 0,003°K pendant deux heures environ.

Le contact thermique entre le sel et l'échantillon est assuré par un très grand nombre de fils ou lamelles de cuivre qui sont en partie noyés dans le sel, la partie restante formant une tige sur laquelle est soudé l'échantillon.

Cet échantillon est polarisé par un petit aimant en fil supraconducteur produisant un champ au plus égal à 12 koe.

La figure (V.2) montre le cryostat que nous avons utilisé dans les expériences de destruction résonnante de l'anisotropie. Le signal de radiofréquence est transmis à l'échantillon par deux boucles de cuivre qui sont connectées au générateur de radiofréquence par l'intermédiaire d'un tube puis d'un fil coaxial. Ce dispositif permet de produire un champ de 10 mœ sur l'échantillon, ce qui induit des courants de Foucauld appréciables. L'échauffement produit est le facteur qui oblige à limiter la puissance appliquée.

TABLEAU V.1

Système	Sel	Thermomètre	Compteur
Au ¹⁹⁸ <u>Fe</u>	Alun de chrome	Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	Scintillateur
Ce ^{137m} <u>Fe</u>	C.M.N. et alun de chrome	Co ⁶⁰ <u>Ni</u> Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	Scintillateur "
Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	C.M.N. et alun de chrome		Scintillateur
Zn ⁶⁵ <u>Fe</u>	C.M.N.	Mn ⁵⁴ <u>Cu</u>	Scintillateur
Cd ¹⁰⁹ <u>Fe</u>	Alun de chrome	Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	Scintillateur et détec.au Ge(Li)
Cd ¹⁰⁹ <u>Ni</u>	C.M.N. et alun de chrome	Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	détec.au Ge (Li)
Yb ¹⁷⁵ <u>Au</u>	Alun de chrome	Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	détec. au Ge (Li)
Yb ¹⁷⁵ <u>Fe</u>			
-polycristal I,II	Alun de chrome	Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	"
-polycristal III	C.M.N.	Co ⁶⁰ <u>Ni</u>	"
-monocristal	Alun de chrome	Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	"
Yb ¹⁷⁵ <u>Ag</u>	Alun de chrome	Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	"
Yb ¹⁷⁵ <u>Ni</u>	Alun de chrome	Co ⁶⁰ <u>Fe</u>	"

2/ Le thermomètre.

La température de l'échantillon après démagnétisation est déduite de l'anisotropie du rayonnement γ émis par une source radioactive soudée sur le cryostat tout à côté de l'échantillon. Cette source doit avoir tous ses paramètres nucléaires et hyperfins bien connus ainsi qu'un schéma nucléaire simple. Enfin elle ne doit pas produire de bruit de fond important dans la région du spectre γ étudié. Les noyaux thermomètres les plus utilisés sont le Co^{60} et le Mn^{54} dans le fer ($1/T = 30$ à 100°K^{-1}) ou le Ni ($1/T = 100$ à 300°K^{-1}). Leurs grandes durées de vie les rendent d'un usage très commode.

3/ Le système de comptage.

Les compteurs utilisés sont soit des scintillateurs à cristal de NaI (Tl) de $3'' \times 3''$, soit une jonction au germanium (Li). Les compteurs à scintillations ont une résolution de $\sim 10\%$ à 1 MeV et une très bonne efficacité. La jonction que nous avons utilisée avait une résolution bien meilleure (7 KeV pour $E = 1$ MeV) mais une mauvaise efficacité. Nous avons donc choisi la jonction chaque fois que l'activité le permettait ou que la spectre du noyau l'exigeait (Yb^{175}).

Le scintillateur ou la jonction, alimentés par une haute tension, sont suivis par une électronique classique : préampli, ampli, stabilisateur de spectre (pour le scintillateur) et analyseur 1600 canaux (Fig. V.3).

Le tableau (V.1) résume les sels, les thermomètres et les compteurs employés dans les expériences décrites dans ce travail.

VII - TRAITEMENT DES RESULTATS.

On enregistre les spectres γ toutes les dix minutes. Puis on les traite de la façon suivante. Après s'être fixé une limite inférieure et une limite supérieure du pic intéressant, on somme les coups de tous les canaux compris entre ces deux limites. Ce résultat fait l'objet de multiples corrections qui sont successivement :

- correction due à la décroissance de l'activité de l'échantillon durant l'expérience

- correction due au "bruit de fond"; on estime celui-ci en faisant une moyenne des coups comptés dans les canaux se situant avant la limite inférieure et après la limite supérieure du pic lorsque celui-ci est bien isolé.

- correction due au chevauchement d'un autre pic voisin lorsque tel est le cas

- correction due à l'angle solide fini du compteur, c'est à dire due au fait que l'expression $W(\theta)$ est intégrée sur une certaine plage autour de θ . Elle est tabulée par JL Yates⁽²⁰⁾.

Ces corrections une fois effectuées, on obtient $W(0)$ et $W(\frac{\pi}{2})$ à la température T atteinte, en faisant le rapport du résultat obtenu à froid (à la température T) et à chaud ($T_0 \approx 1^\circ K$) pour les angles $\theta = 0$ et $\theta = \frac{\pi}{2}$.

Si le rayonnement de plus grande multipolarité est dipolaire les intensités relatives de $W(0)$ et de $W(\frac{\pi}{2})$ sont :

$$\begin{aligned} W(0) &= 1 + U_2 B_2 F_2 \\ W(\frac{\pi}{2}) &= 1 - \frac{1}{2} U_2 B_2 F_2 \end{aligned} \quad (V.19)$$

Si toutes les caractéristiques nucléaires des transitions mises en jeu sont connues, on sait calculer $U_2 F_2$ et la mesure d'une seule des deux quantités $W(0)$ ou $W(\frac{\pi}{2})$ suffit à déterminer B_2 . En pratique on utilise toujours $W(0)$ sur lequel l'effet d'anisotropie est le plus fort, $W(\frac{\pi}{2})$ servant à contrôler ce résultat.

Si le rayonnement de plus grande multipolarité est quadrupolaire les intensités relatives de $W(0)$ et $W(\frac{\pi}{2})$ sont :

$$\begin{aligned} W(0) &= 1 + U_2 B_2 F_2 + U_4 B_4 F_4 \\ W(\frac{\pi}{2}) &= 1 - \frac{1}{2} U_2 B_2 F_2 + \frac{3}{8} U_4 B_4 F_4 \end{aligned} \quad (V.20)$$

$$\text{soit} \quad U_2 B_2 F_2 = A_2 = \frac{3}{7} (W(0) - \frac{8}{3} W(\frac{\pi}{2}) + \frac{5}{3}) \quad (V.21)$$

$$\text{et} \quad U_4 B_4 F_4 = A_4 = \frac{4}{7} (W(0) + 2W(\frac{\pi}{2}) - 3)$$

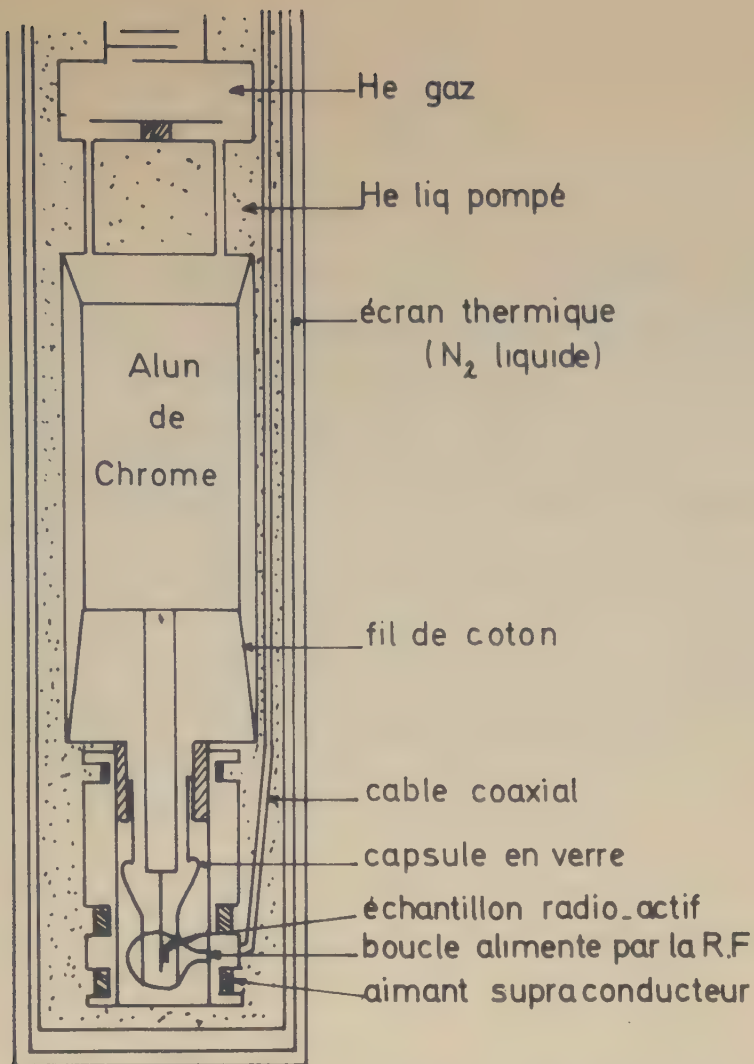
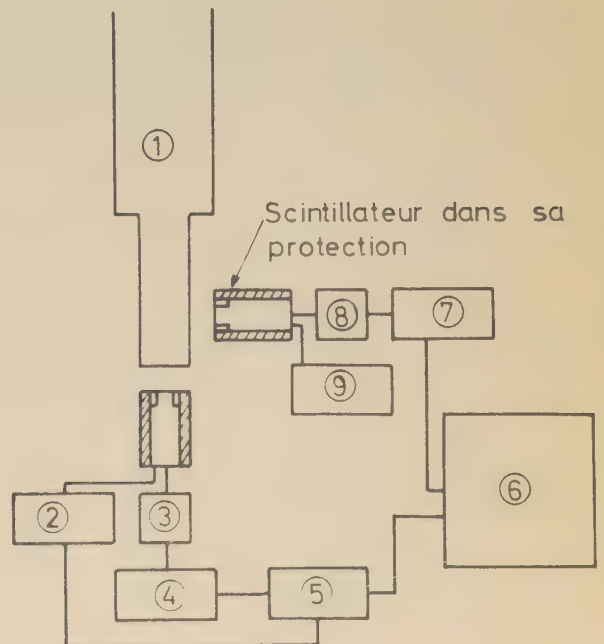


Figure V.2 -

Cryostat utilisé dans les expériences de destruction résonante de l'orientation nucléaire.

Figure V.3 -

Schéma du circuit électronique.



- | | |
|-------------------|-----------------------------|
| ① Cryostat | ⑤ Stabilisateur de spectres |
| ② Alimentation Ht | ⑥ Selecteur d'Amplitude |
| ③ Pré-ampli | ⑦ Ampli |
| ④ Ampli | ⑧ Pré ampli |
| | ⑨ Alimentation Ht |

Lorsque l'interaction hyperfine est purement magnétique ou purement quadripolaire et que l'anisotropie est faible, B_4 qui est alors proportionnel à $(\frac{\mu H}{IkT})^4$ ou $(\frac{P}{IkT})^2$ est négligeable devant B_2 car ce dernier est, dans les mêmes conditions, proportionnel à $(\frac{\mu H}{IkT})^2$ ou $(\frac{P}{IkT})$

Si l'anisotropie est forte, la donnée simultanée de $U_2 B_2 F_2$ et de $U_4 B_4 F_4$ permet non seulement de déterminer μH mais aussi un coefficient de mélange des transitions mises en jeu si celui-ci est le seul paramètre nucléaire inconnu. Pour les déduire, on trace A_4 en fonction de A_2 et on cherche la valeur du coefficient de mélange qui fait coïncider le mieux les points expérimentaux avec la courbe théorique.

Remarques.

Cette méthode de mesure du champ effectif est d'application très large. Elle est d'autant meilleure que l'effet d'anisotropie est grand, donc que μH est grand et U_2 proche de l'unité.

Le rayonnement observé doit être assez énergétique pour traverser le cryostat, et le temps de vie du noyau orienté doit être convenable.

Dans cette technique on mesure un champ effectif moyen : si le champ hyperfin varie d'un atome à l'autre (par exemple s'il existe plusieurs sites distincts) l'anisotropie mesurée est la valeur moyenne d'une distribution.

C H A P I T R E V I

IMPLANTATIONS ET INTERACTIONS HYPERFINES

La plupart de nos échantillons ont été préparés par implantation ionique à l'aide d'un séparateur d'isotopes : on fait tomber sur la matrice métallique étudiée un faisceau d'ions de l'impureté désirée. Ces ions, s'ils sont assez énergétiques, pénètrent à l'intérieur de la matrice.

Cette méthode permet donc en principe de réaliser n'importe quel alliage avec une très grande pureté^(*), ce qui étend considérablement le domaine d'étude des interactions hyperfines. Malheureusement, ce faisant, nous avons créé un nouveau problème qui peut s'énoncer ainsi : où l'ion implanté est-il situé dans le réseau et quelle est l'influence du site sur les interactions hyperfines ?

Nous décrivons brièvement dans ce chapitre les théories et les techniques expérimentales associées à ce mode de préparation, puis nous essayons d'élucider, sur des exemples précis, le problème que nous avons posé, et d'en tirer des règles générales.

I - ETUDE DE L'IMPLANTATION ET REALISATION D'UN MONTAGE

Examinons maintenant quels sont les facteurs qui déterminent le parcours des ions implantés. Nous ne considérerons que des ions lourds ($Z \gg 1$) et de faible énergie (< 130 keV).

1° / Influence de l'incidence du faisceau

Considérons un faisceau d'ions, de large ouverture angulaire, tombant sur un monocristal. Nous distinguerons deux cas :

(*) De plus le contrôle de l'énergie des ions incidents permet un contrôle précis du profil de la concentration d'ions implantés dans la matrice.

1er cas : les ions arrivent sur le cristal dans une direction éloignée d'une direction cristallographique de bas indice. Les ions incidents vont subir des chocs avec les ions du cristal mais il n'y aura pas de corrélation entre ces chocs et tout se passe comme si le cristal était un gaz ionisé de forte densité⁽⁴¹⁾. Le nombre de défauts créés (lacunes, interstitiels, boucles de dislocations) sur le parcours des ions est important.

2^e cas : les ions arrivent selon une direction cristallographique de bas indice. Les ions incidents ayant tendance à quitter cette direction vont y être ramenés par les ions du cristal qui se trouvent le long de cette direction. On dit que les ions sont canalisés⁽⁴²⁾. Ils le seront d'autant mieux que le canal est plus ouvert et que la distance entre 2 atomes dans l'axe du canal est plus petite (Axe 110 pour un réseau CFC, Axe 111 et 100 pour un réseau CC). Le nombre de défauts créés est bien moindre que dans le cas précédent.

On peut montrer qu'il existe un angle d'incidence maximum $\psi_c^{(*)}$ des ions implantés au delà duquel la canalisation n'a plus lieu. Cet angle est calculé par Lindhard⁽⁴²⁾ dans plusieurs approximations.

De nombreuses expériences ont été faites pour mettre en évidence la canalisation des ions et pour confronter la valeur de ψ_c avec les valeurs théoriques.

2° / Influence de l'énergie du faisceau : calcul des parcours d'ions implantés

2.1. Cas des ions non canalisés

Un ion non canalisé va perdre son énergie dans des collisions élastiques avec les noyaux du réseau d'une part et par excitation électronique d'autre part. Ce dernier phénomène, quoique prépondérant aux hautes énergies, ne représente dans le cas considéré ici qu'une faible part de l'énergie perdue par l'ion incident.

(*) Cet angle est de l'ordre de 7° dans nos expériences.

J.Lindhard et al.⁽⁴³⁾⁽⁴⁴⁾ a pu calculer le pouvoir d'arrêt des excitations électroniques et des collisions nucléaires dans un modèle où le potentiel d'interactions entre atomes est :

$$U(r) = (Z_1 Z_2 e^2 / r) \phi_0(r/a) \quad (\text{VI.1})$$

où ϕ_0 est la fonction de Thomas-Fermi.

Il trouve ainsi une courbe universelle du parcours des ions dans une matrice en fonction de l'énergie à l'aide de paramètres sans dimension à savoir :

$$\rho = R N M_2 a^2 4\pi M_1 / (M_1 + M_2)^2 = AR \quad (\text{VI.2})$$

$$\epsilon = E a M_2 / Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2) = BE \quad (\text{VI.3})$$

où R est le parcours moyen des ions incidents et E leur énergie. Les indices 1 et 2 désignent respectivement l'ion incident et les atomes de la matrice.

La figure (VI.1) donne les courbes $\rho = f(\epsilon)$ pour diverses valeurs de k, coefficient caractérisant le pouvoir d'arrêt électronique qui est égal à

$$\frac{d\epsilon}{d\rho} = k \epsilon^{+1/2} \quad (\text{VI.4})$$

pour des vitesses modérées

$$\text{avec } k = \xi_e \times \frac{0,0793 Z_1^{1/2} Z_2^{1/2} (M_1 + M_2)^{3/2}}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/4} M_1^{3/2} M_2^{1/2}} \text{ où } \xi_e \approx Z_1^{1/6} \quad (\text{VI.5})$$

J.Lindhard trace aussi une courbe donnant le carré de l'écart quadratique moyen relatif au parcours $R \pm \frac{\Delta R^2}{R^2}$ en fonction de ϵ .

Sur la figure (VI.2) on peut voir que si k et ϵ sont suffisamment faibles, cet écart ne varie que très peu avec l'énergie.

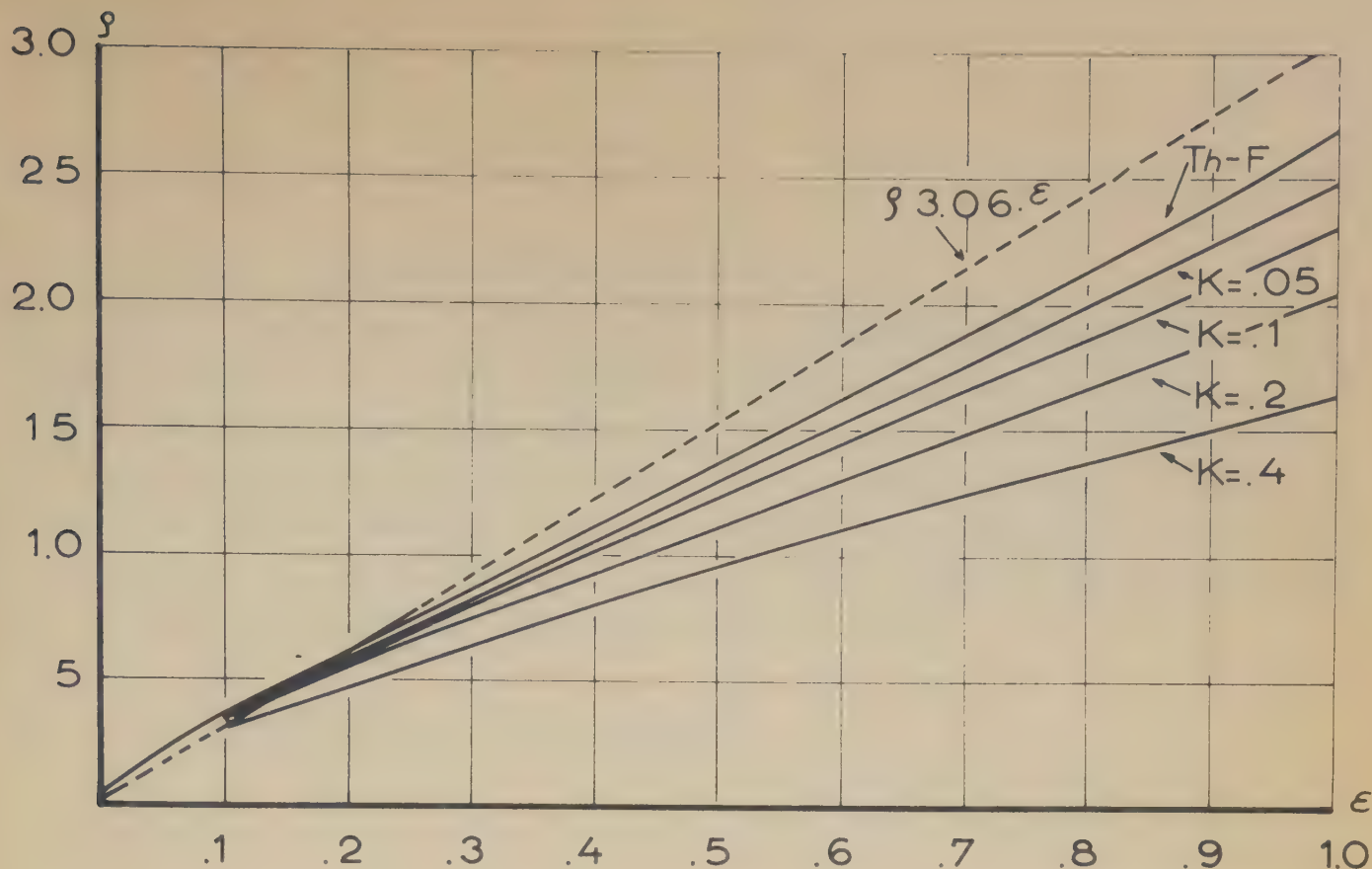


Figure VI. 1 - Parcours des ions implantés en fonction de leur énergie⁽⁴³⁾
(variables sans dimensions).

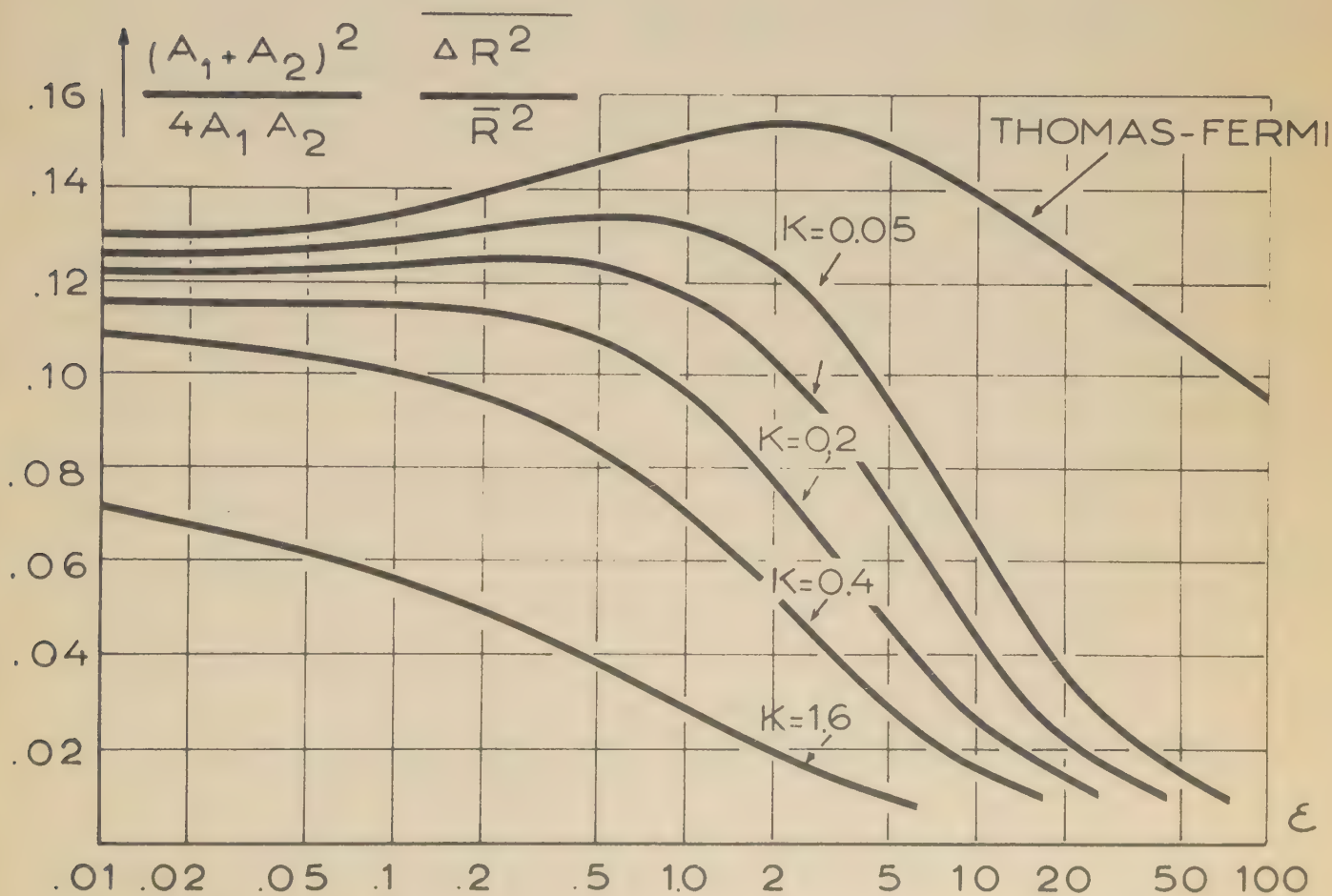


Figure V. 2 - Ecart quadratique moyen relatif du parcours des ions divisé
par $\gamma = 4M_1M_2 / (M_1 + M_2)^2$, en fonction de leur énergie, pour plusieurs⁽⁴³⁾
valeurs de la constante k caractérisant le pouvoir d'arrêt électronique.

2.2. Cas des ions canalisés

Aux basses énergies les pertes par collisions nucléaires restent faibles pour les ions canalisés, ils auront donc un parcours jusqu'à quelques dizaines de fois plus long que les ions non canalisés. L'étude théorique de ce parcours a donné lieu à quelques calculs analytiques sur des modèles très simples et à de nombreuses études par simulation sur ordinateur. Notons que la présence de défauts cristallins réduit très sensiblement la canalisation.

3°/ Situation de l'ion implanté

Il est essentiel, dans nos expériences, de savoir si l'ion implanté est en situation substitutionnelle ou en situation interstitielle. S'il est très difficile de le savoir a priori, il est possible toutefois de le déterminer expérimentalement en utilisant des méthodes basées sur le phénomène de canalisation. La méthode la plus employée est la diffusion Rutherford⁽⁴⁵⁾ de particules lourdes (p, α , ^{14}N etc) si le numéro atomique de l'ion implanté est suffisamment différent de celui de la matrice.

Le principe de cette méthode est le suivant : on fait tomber un faisceau de particules lourdes sur un monocristal précédemment soumis à une implantation d'ions étrangers et l'on mesure le taux de particules rétrodiffusées. Quand le cristal a une orientation quelconque vis-à-vis du faisceau, tous les ions implantés, quel que soit leur site, diffusent "normalement" le faisceau incident. Quand par contre le cristal est aligné de façon à canaliser les particules incidentes, seuls les ions implantés interstitiels, obstruant partiellement le canal, interagiront "normalement" avec les particules incidentes. Par conséquent si N est le taux de particules rétrodiffusées, on a l'habitude d'en déduire le pourcentage d'ions implantés en position substitutionnelle par la relation

$$x = \frac{N(\text{direct, quelconque}) - N(\text{direct, de canalisation})}{N} \quad (\text{VI.6})$$

Toutefois, comme l'ont fait remarquer Alexander et al.⁽⁴⁶⁾, ceci suppose deux hypothèses :

- si les ions étrangers implantés sont substitutionnels, l'atténuation du taux de particules rétrodiffusées par les ions étrangers et par ceux du réseau lorsque le cristal est orienté dans une direction de canalisation, est la même

- si les ions étrangers implantés sont interstitiels le long de la direction de canalisation étudiée, ils diffusent le faisceau incident comme s'il n'y avait pas canalisation, ce qui suppose le flux de particules canalisées constant dans toute la section droite du canal.

Or ces auteurs ont montré que si la première hypothèse est vérifiée, la seconde ne l'est pas : on constate que le faisceau canalisé présente un large maximum au centre du canal. Par conséquent un ion étranger situé au centre du canal interagira mieux avec un faisceau canalisé qu'avec un faisceau de direction quelconque. Cet "effet de pic" rend beaucoup plus difficile l'interprétation de ces expériences lorsqu'il existe des ions implantés en position interstitielle. Des renseignements supplémentaires peuvent être alors déduits de l'étude du taux d'ions diffusés en fonction de l'angle d'incidence au voisinage immédiat de la direction de canalisation⁽⁴⁷⁾.

4° / Réalisation d'un montage d'implantation

Afin d'étudier les interactions hyperfines du cadmium, de l'ytterbium et du cérium dans le fer et le nickel dans lesquels ces éléments sont insolubles, nous avons réalisé un montage d'implantation s'adaptant sur un séparateur d'isotopes. Il se compose essentiellement d'une post-accélération dont un premier essai a montré l'absolue nécessité pour que les ions pénètrent suffisamment dans le fer. Ce montage permet d'accélérer des ions jusqu'à une énergie de 130 keV et de les implanter sur une surface au plus égale à quelques centimètres carré.

Nous examinerons successivement les caractéristiques du séparateur utilisé et celles de la post-accélération.

4.1. Caractéristiques du séparateur utilisé

4.1.1. Dispersion

Les implantations ont été réalisées avec le séparateur d'isotopes de l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay⁽⁴⁸⁾⁽⁴⁹⁾.

Celui-ci est un séparateur électromagnétique à deux étages à champs magnétiques horizontaux. Les déflexions produites par les 2 champs sont en sens inverse l'une de l'autre, de façon que les dispersions s'ajoutent. Le faisceau de l'isotope désiré est seul admis au deuxième étage, les autres faisceaux sont arrêtés par une plaque de graphite munie d'une fente de largeur variable au niveau de la focalisation du faisceau intéressant.

Le facteur d'enrichissement en masse M' par rapport à la masse M , c'est-à-dire le rapport

$$F_E = \left(\frac{\text{concentration en } M'}{\text{concentration en } M} \right)_{\text{sortie}} \times \left(\frac{\text{concentration en } M}{\text{concentration en } M'} \right)_{\text{entrée}} \quad (\text{VI.7})$$

est d'environ 10.000 dans le meilleur cas au voisinage des terres rares.

Le rendement global moyen du séparateur, c'est-à-dire le rapport de la masse totale recueillie à la même masse mise initialement dans le séparateur, varie beaucoup avec les éléments utilisés et les conditions de séparation. Dans le cas de nos expériences, il était toujours de 1/100 à 5/100.

4.1.2. Caractéristiques de la source d'ions

Les sources d'ions sont du type à cathode chaude et décharge transversale à la direction d'extraction du faisceau d'ions. La vapeur de l'élément désiré ou d'un de ses composés (le plus souvent un chlorure formé in situ par passage d'un courant de CCl_4 sur l'oxyde) arrivant sur cette décharge est ionisée par bombardement électronique. L'élément lui-même ou son composé est placé dans un creuset que l'on introduit dans un four dont on règle le chauffage en fonction du débit de vapeur désiré. On maintient toujours la chambre d'arc à une tempé-

rature supérieure à celle du four afin d'éviter une condensation. Les sources sont percées à la sortie d'une fente parallèle à la décharge pour l'extraction du faisceau d'ions. La longueur et l'épaisseur de cette fente influe beaucoup sur les caractéristiques du faisceau et donc sur les performances du séparateur. Nous avons fait plusieurs essais de profil de fente afin d'avoir un rendement global et une focalisation optimaux (la recherche d'une forte intensité de faisceau n'avait aucun intérêt pour nous).

Enfin la source est portée à une tension positive de 40 kV par rapport à la masse du séparateur.

4.1.3. Caractéristiques du faisceau

L'intensité du faisceau est très variable et peut atteindre quelques milliampères. Toutefois, dans nos expériences, seuls des courants de quelques microampères d'isotope stable ont été utilisés. Au niveau du collecteur du deuxième étage, le faisceau présente une section droite en forme de ménisque de 800 mm de rayon, de 3 cm de longueur et de 2 mm de largeur environ. Son ouverture est de près de 3°.

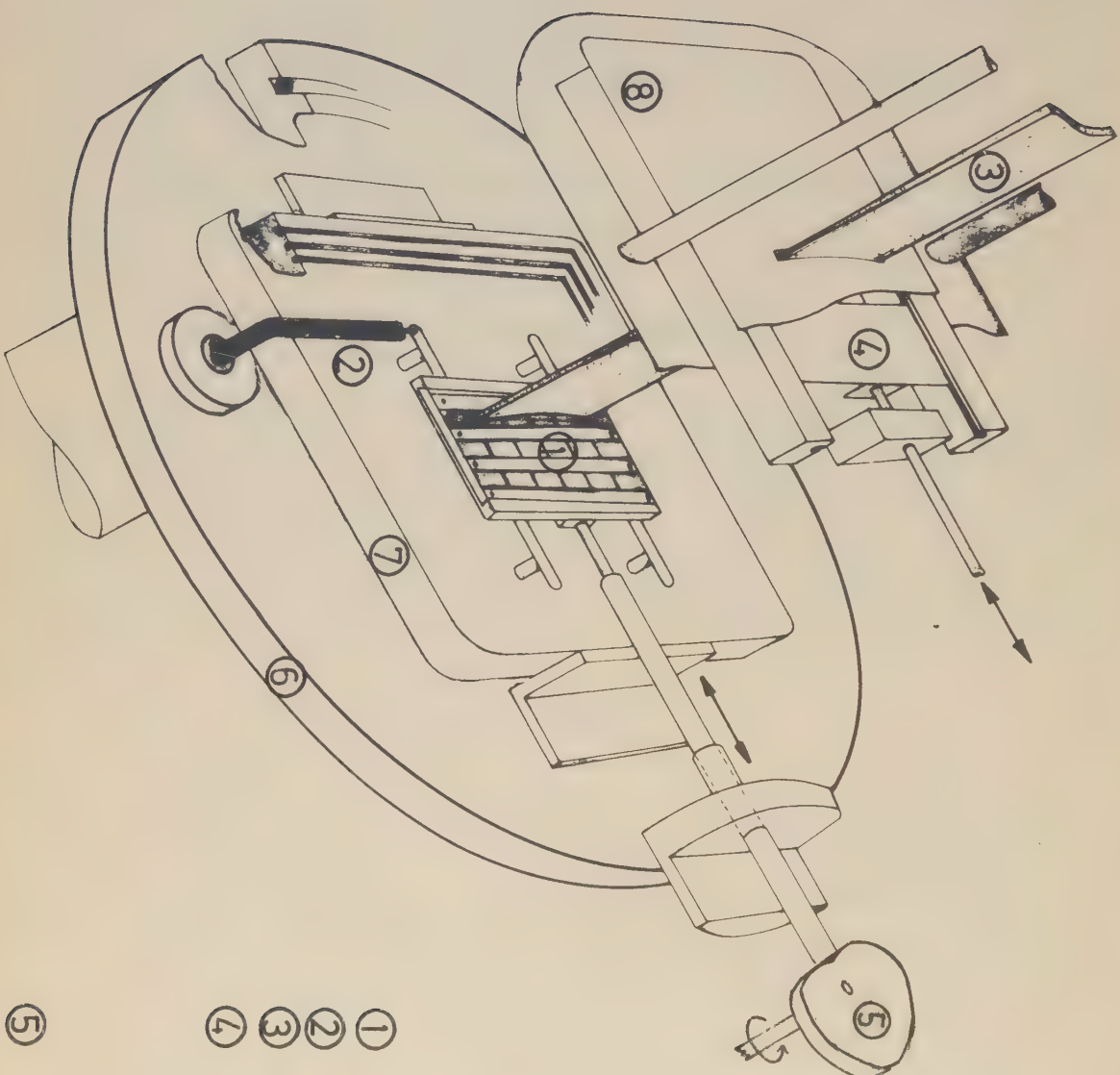
4.2. La post-accélération

Ce dispositif est constitué d'un flasque en plexiglas s'adaptant sur l'étage final du séparateur et soutenant deux rails métalliques sur lesquels coulisse une plaque porte-cibles dont le déplacement est commandé par une tige s'appuyant sur une came. La plaque est portée à la haute tension par l'entremise des rails. A 10 cm environ au dessus de celle-ci et fixé au séparateur, se trouve un ensemble de plaques, au potentiel de la masse, qui permettent de ne laisser passer dans l'espace accélérateur que le faisceau désiré et de mesurer son intensité. Le détail de ce dispositif est indiqué sur la figure (VI.3).

Nous avons également réalisé un passage très haute tension pour alimenter la post-accélération lorsque celle-ci est mise en place dans le cube du second étage du séparateur.

Cette post-accélération fonctionne jusqu'à 90 kV qui s'ajoutent aux 40 kV fournis par le séparateur. Elle permet de déplacer la cible en cours d'implantation suivant une loi fixée par le profil de la came.

Figure VI 3: La post.-accélération



- ① Cibles
- ② Fil d'arrivée THT
- ③ Faisceau
- ④ Plaque en Mo pouvant venir cacher l'orifice par lequel passe le faisceau (mesure du courant faisceau)
- ⑤ Came commandant le déplacement des cibles.
- ⑥ Flasque en plexiglas.
- ⑦ Table en plexiglas

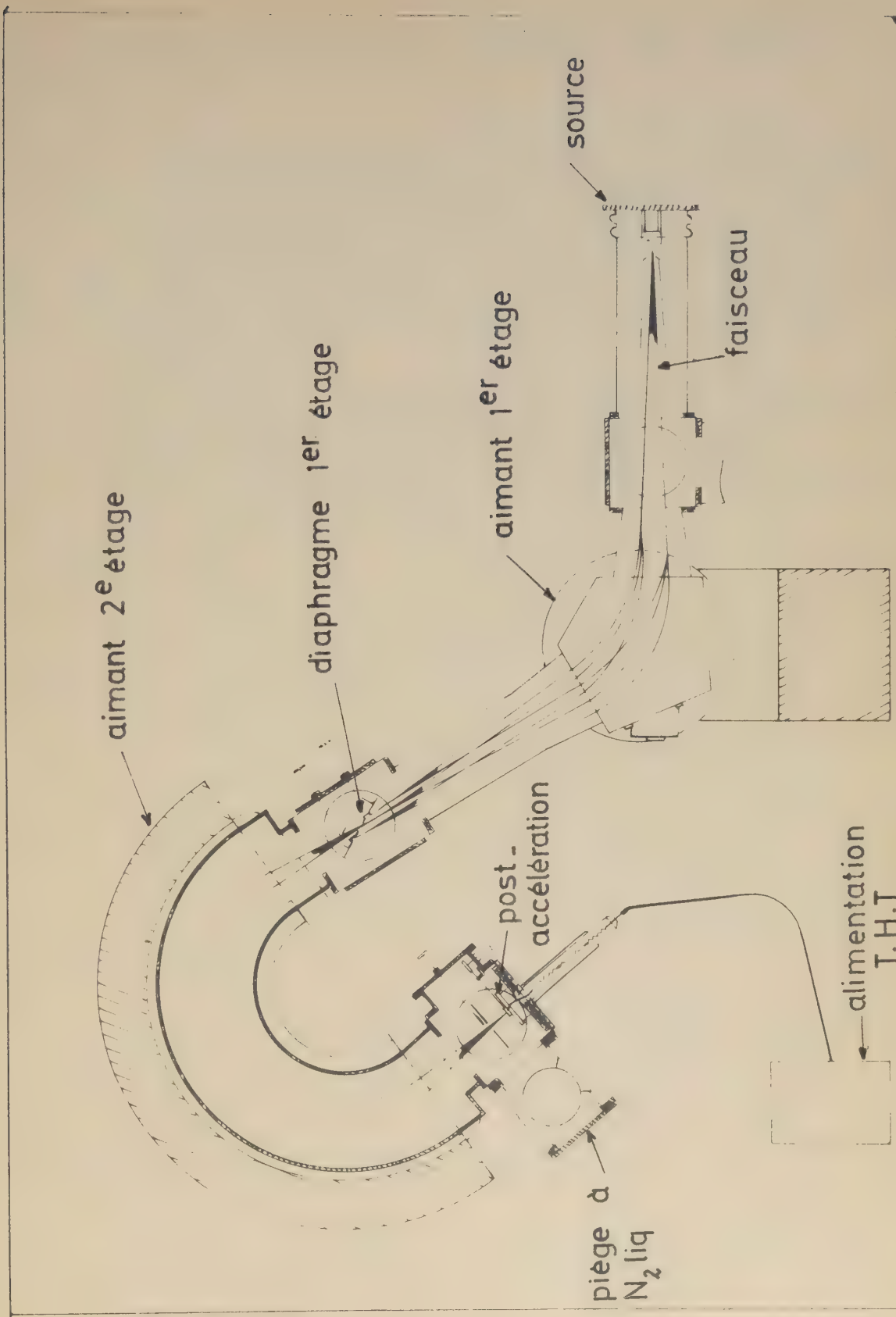


Fig VI 3bis : La post-accélération montée sur le second étage du séparateur d'isotopes de l'I.P.N.

II - INTERACTIONS HYPERFINES D'IONS IMPLANTES DANS LES METAUX

I^o / Généralités

Les interactions hyperfines subies par un noyau mesurent des paramètres liés à l'environnement de celui-ci. Les types de sites occupés par les ions implantés dans un cristal pouvant être multiples, on s'attend à l'existence d'autant d'interactions hyperfines différentes que de types de sites. Le problème qui se pose est donc triple puisqu'il s'agit de :

- déterminer chaque type de site existant dans l'échantillon
- relier chaque interaction hyperfine à son site
- mesurer sur chaque site l'intensité de cette interaction.

Ces trois informations sont nécessaires à l'interprétation complète des valeurs mesurées.

Seule une méthode spectroscopique telle que l'effet Mössbauer permet de résoudre sans ambiguïté le troisième point. Dans les cas simples cependant, on peut penser qu'une méthode comme l'orientation nucléaire, qui ne mesure que la valeur moyenne des interactions hyperfines existantes, peut donner également de précieux renseignements. Quelle que soit la méthode de mesure utilisée, une parfaite réponse aux première et deuxième questions que nous avons posées nécessite des expériences complémentaires de localisation des ions implantés, comme, par exemple, les expériences de canalisation que nous avons mentionnées précédemment.

Nous proposons d'appliquer la technique de l'implantation ionique à l'étude, par orientation nucléaire, d'interactions hyperfines et de relaxations nucléaires d'éléments inclus dans des matrices métalliques dans lesquelles ils sont insolubles ou presque insolubles, nous nous sommes d'abord efforcé de déterminer

- s'il était possible d'obtenir par cette technique des échantillons dans lesquels les interactions hyperfines des impuretés soient uniques, et dans ce cas dans quelles conditions ;

- dans le cas contraire, s'il existait un modèle simple qui permette d'obtenir une information intrinsèque à un site déterminé

nonobstant le caractère global de la méthode de mesure utilisée.

Nous présentons ici les résultats d'expériences que nous avons faites dans ce but sur les systèmes AuFe et CeFe et nous comparons nos résultats avec des expériences de canalisation effectuées sur les mêmes systèmes. Enfin nous passons brièvement en revue les résultats d'expériences similaires aux nôtres.

2° / Interactions hyperfines de l'or et du cérium implantés dans le fer

Ces deux systèmes caractérisent en quelque sorte deux limites d'insolubilité : l'or est faiblement soluble dans le fer ($\sim 1\%$) et le cérium est réputé complètement insoluble. Il était donc intéressant de comparer leur comportement lors d'une implantation.

2.1. Le champ hyperfin de l' Au^{198} implanté dans le fer

Cet élément a été choisi car il présente l'avantage d'avoir un champ hyperfin élevé et connu avec précision (RMN) ce qui facilitait beaucoup les mesures. En outre l' Au^{198} que nous avons utilisé, possédant une grande section efficace aux neutrons thermiques (98,8 b), s'obtient très facilement à la pile par irradiation d'or naturel (Au^{197}). Ses paramètres nucléaires sont bien déterminés. On peut donc prévoir, avec très peu d'erreur, l'anisotropie présentée par la raie γ de 1,088 MeV en fonction de la température pour un échantillon dans lequel tous les ors sont en position substitutionnelle. Il s'agit par conséquent de comparer l'anisotropie effectivement mesurée sur l'échantillon implanté à l'anisotropie calculée. Nos expériences ayant été déjà décrites en détail dans un travail précédent⁽⁵⁰⁾, nous ne ferons que rappeler l'essentiel de nos résultats.

Ceux-ci sont résumés sur le tableau (VI.1). Sur celui-ci R est le parcours moyen des ions or dans le fer et ΔR est l'écart quadratique moyen sur R. Ces quantités sont calculées à l'aide des formules de Lindhard. On calcule les concentrations locales à partir de la mesure de l'activité de l'échantillon en ne tenant pas compte de la canalisation et en supposant que les ions sont répartis uniformément dans un volume limité par une surface égale à la surface S balayée par le faisceau et une profondeur égale à ΔR . Soit

Tableau VI.1

système	éch.	E _{keV}	R _A ^o	ΔR _A ^o	concen. at/at	Dose ions/cm ²	Recuit	Résultat
Au ¹⁹⁸ Fe	I	30	68	17	4.10 ⁻⁴	1,5.10 ¹²	nul	$\frac{H_{imp}}{H_{diff}} = 0,1$
	II	100	170	49	4.10 ⁻⁵	10 ¹²	nul 100 min à 800°C	$\frac{H_{imp}}{H_{diff}} = 0,75 \pm 0,05$ " = 1,00 ± 0,05
	III	100	170	49	4.10 ⁻⁴	10 ¹³	nul 100 min à 800°C	$\frac{H_{imp}}{H_{diff}} = 1,00 \pm 0,05$ " = 1,00 ± 0,05
e ^{127m} Fe	I	100	200	60	3.10 ⁻⁵	10 ¹²	nul	H _{eff} = 800 koe (33%) H _{eff} = 0 (67%)
	II	100	200	60	3.10 ⁻⁵	10 ¹²	nul	idem

Tableau VI.2

Système	Energie (keV)	Dose (ions/cm ²)	concentration at/at	Axe	Taux d'ions diffusés par les ions implantés	Taux d'ions diffusés par la matrice
¹⁹⁷ Fe	80	10 ¹⁵	1,6.10 ⁻²	<111>	0,15 ± 0,01	0,12
				<100>	0,15 ± 0,01	0,12
				<110>	0,23 ± 0,02	0,14
	150	10 ¹⁵	0,9.10 ⁻²	<100>	0,19 ± 0,01	0,11
				<110>	0,24 ± 0,02	0,15
	150	10 ¹⁴	9.10 ⁻⁴	<111>	0,115 ± 0,01	0,065
<100>				0,185 ± 0,015	0,10	
<110>				0,28 ± 0,04	0,12	
¹⁴⁰ Fe	80	10 ¹³	6.10 ⁻⁵	<111>	2,0 ± 0,5	0,055
crystal non implanté				<111>	-	0,028

$$c_{\text{Au/Fe}} = \frac{\frac{A}{\Gamma} \times 3,7 \cdot 10^{10} \left\{ 1 + \left(\frac{N_{197}}{N_{198}} \right)_{\text{Fe}} \right\} \times 56}{S \times \Delta R \times 7,86 \times 6,03 \times 10^{23}} \quad (S \text{ en cm}^2 \text{ et } \Delta R \text{ en cm})$$

(VI.8)

A est l'activité de la cible en curies, Γ est la constante radioactive ($\Gamma = 1/\tau_n$) et $(N_{197}/N_{198})_{\text{Fe}}$ le rapport du nombre de noyaux d'or 198 au nombre de noyaux d'or 197 dans la cible de fer. Le calcul de ce rapport nécessite la connaissance du facteur d'enrichissement du séparateur. Celui-ci dépendant d'un grand nombre de facteurs (conditions de source, focalisation, etc...) est susceptible de fortes variations d'une expérience à l'autre (d'un facteur 10 dans le plus mauvais cas) ce qui rend le calcul de c très imprécis.

Dans la dernière colonne du tableau est indiqué le rapport des valeurs du champ effectif de l'or dans le fer déduit des expériences sur les sources implantées à la valeur mesurée par résonance de ce même champ sur des sources fabriquées par diffusion classique. Analysons ces résultats.

Il est clair que dans la première expérience les ions n'ont pas suffisamment pénétré à l'intérieur du métal, leur énergie étant trop faible. En effet il existe toujours, à la surface du métal, une couche d'oxyde dont l'épaisseur est typiquement $\sim 40 \text{ \AA}$ (51). Notons que, pour cet échantillon, le simple fait d'avoir frotté la surface de fer à l'aide d'un papier doux avait enlevé le tiers de l'activité incluse.

Le résultat trop petit de la deuxième expérience est sans doute imputable à une dose réelle en atomes d'or par unité de surface trop élevée. En effet, lors de l'implantation de l'or dans cet échantillon, le champ magnétique du second étage du séparateur fluctuait beaucoup plus que normalement et donc la contamination en or stable a dû être beaucoup plus grande que celle calculée (la concentration totale en or restant toutefois beaucoup plus petite que la concentration limite d'équilibre).

Il paraît donc raisonnable d'admettre qu'à forte dose seul un certain pourcentage des ions implantés occupent des sites substitutionnels, les autres occupant des sites dans lesquels le champ hyperfin agissant sur les noyaux d'or est beaucoup plus faible. Un recuit d'une

Résonance de Au^{198}Fe

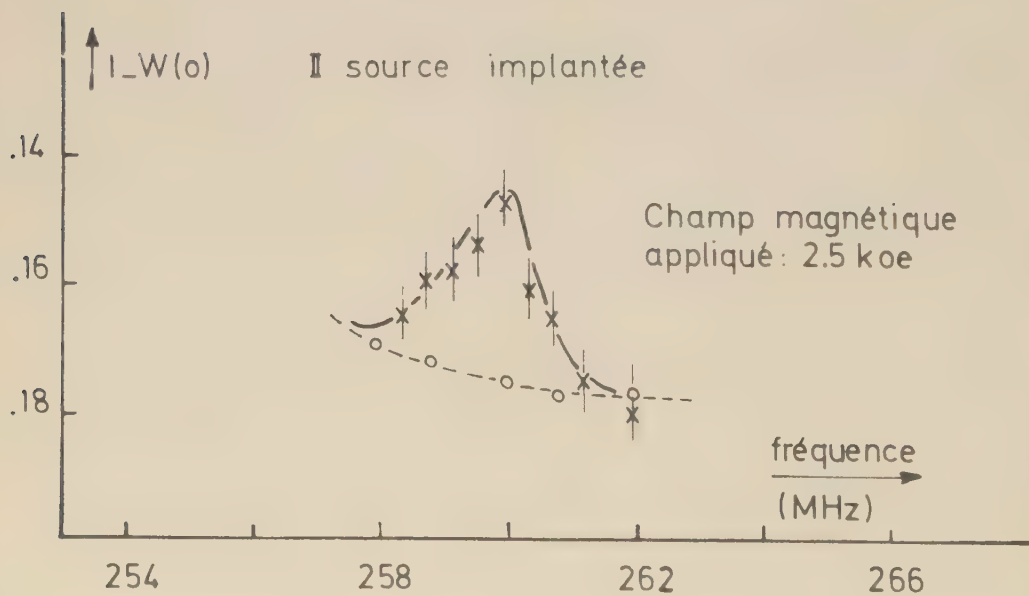
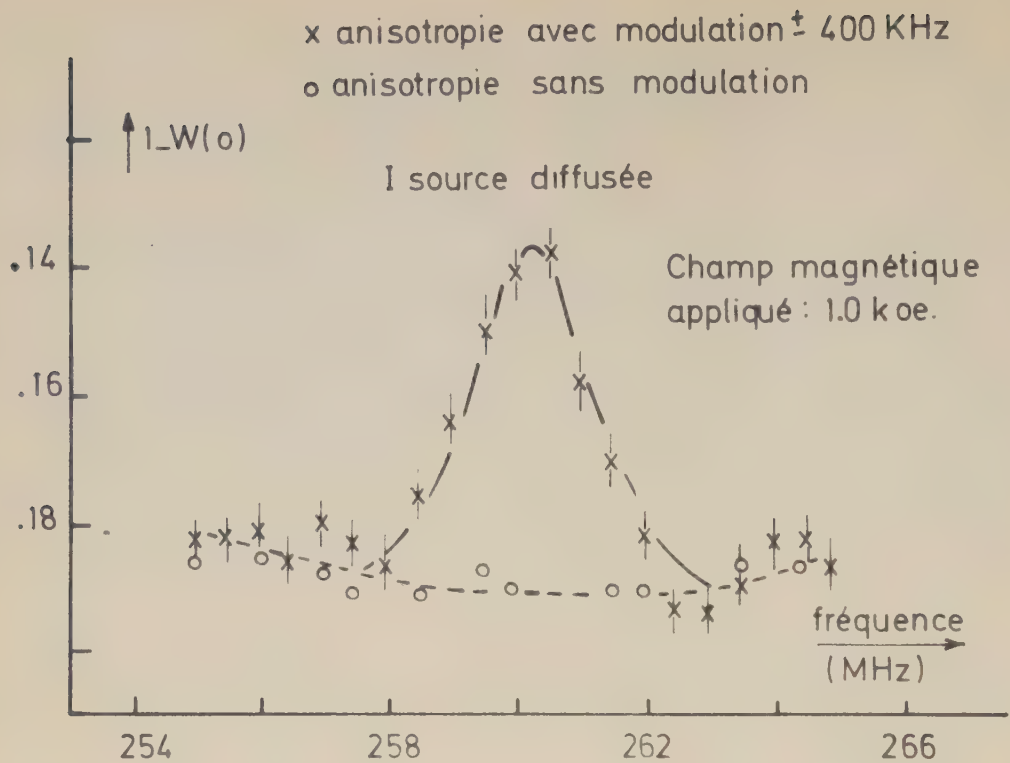


Figure VI. 4 - Variation de l'anisotropie γ de Au^{198}Fe en fonction de la fréquence du champ R.F. appliqué.

heure et demie à 800°C guérissant tous les défauts et commençant à diffuser les atomes d'or dans la matrice, le champ hyperfin mesuré retrouve sa vraie valeur.

La troisième expérience semble prouver qu'à dose plus faible, les ions or occupent presque tous des positions substitutionnelles.

Il nous a paru intéressant de confirmer ce résultat par une expérience de destruction résonnante de l'orientation sur un échantillon semblable, c'est-à-dire donnant la même anisotropie. Comme l'indique la figure (VI.4) où nous montrons les courbes de résonance obtenues d'une part pour l'échantillon implanté, d'autre part pour une source diffusée classique⁽⁵²⁾, les fréquences de résonance sont identiques dans les deux cas et les largeurs de raies similaires.

Comparons ces résultats à ceux de l'étude de la localisation de l'Au¹⁹⁷ dans le fer par diffusion Rutherford d'ions ¹⁴N canalisés. Ces expériences ont été réalisées à Harwell par R.Alexander et al.⁽⁵¹⁾. Le rapport entre le taux d'ions diffusés, par les atomes d'or le long d'une direction de canalisation et le taux d'ions diffusés par ces mêmes atomes dans une direction quelconque est donné dans la deuxième colonne du tableau (VI.2). Ce rapport mesure, comme nous l'avons vu, le pourcentage d'atomes d'or implantés en position substitutionnelle. Le même rapport, mais concernant les atomes de la matrice, est indiqué dans la dernière colonne. Il mesure la fraction non canalisée du faisceau de ¹⁴N incident. Nous voyons d'après ces résultats que, pour une dose de 10^{14} at/cm², la proportion d'atomes d'or dans des sites substitutionnels n'est que de ~ 85 %, les atomes d'or restant occupant des sites proches du centre du canal 110 puisque le taux d'ions ¹⁴N diffusés suivant cette direction est maximum.

Ces résultats sont tout à fait compatibles avec ceux de nos propres expériences et confirment, en la complétant, l'interprétation que nous avons donnée.

2.2. L'orientation du cérium dans le fer

2.2.1. Généralités

Le cérium a la particularité d'avoir deux états d'ionisation possibles, l'un magnétique $\text{Ce}^{3+}(4f^1)$, l'autre non magnétique $\text{Ce}^{4+}(4f^0)$. On peut se demander quel sera son état d'ionisation lorsqu'il sera inclus dans le fer. L'étude de la grandeur et du signe de son champ hyperfin peut à priori éclaircir cette question. En effet si le cérium a la valence 4+, son champ hyperfin est principalement dû à l'interaction de contact résultant de la polarisation des électrons du fer et l'on s'attend à ce que sa valeur soit proche de la valeur mesurée pour Lu^{3+} dans le fer (- 500 koe). Si par contre le cérium a la valence 3+, il faut également tenir compte de la contribution orbitale due à l'électron f, qui est positive et élevée : sa valeur peut atteindre + 2 Moe (cf. chap. I) si l'on suppose les effets de champs cristallins faibles par rapport au champ d'échange.

Notons que Kugel et al.⁽⁵³⁾ ont réalisé une expérience d'implantation par recul, après excitation coulombienne, du Ce^{142} dans le fer de laquelle ils déduisent la valeur du champ hyperfin suivante : $H_{\text{eff}} = - 0,45 \pm 0,29$ Moe. Toutefois la présence également d'un champ transitoire très important (10 ± 2 Moe-psec) dû au mouvement de la particule, ainsi que l'hypothèse que font ces auteurs d'un seul site pour les ions implantés, jettent quelques doutes sur leur résultat.

2.2.2. Détails expérimentaux

Le noyau de cérium que nous avons utilisé est le $\text{Ce}^{137\text{m}}$ dont nous avons étudié la raie γ de transition isomérique d'énergie 255 keV (Fig. VI.5). Ce noyau possède l'avantage d'avoir des paramètres nucléaires relativement bien connus et de donner des effets d'anisotropie de rayonnement élevés en fonction de son orientation. De plus, pratiquement tous les noyaux de $\text{Ce}^{137\text{m}}$ se desexcitent en émettant la raie γ de 255 keV, ce qui a permis de fabriquer des sources de concentration très faibles en cérium.

Les ions cérium sont implantés dans une cible de fer de fusion de zone polycristalline sous une énergie de 100 keV. Trois échan-

Schéma de désintégration du $\text{Ce}^{137\text{m}}$

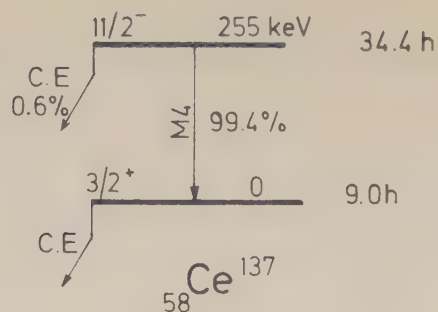


Figure VI. 5 -

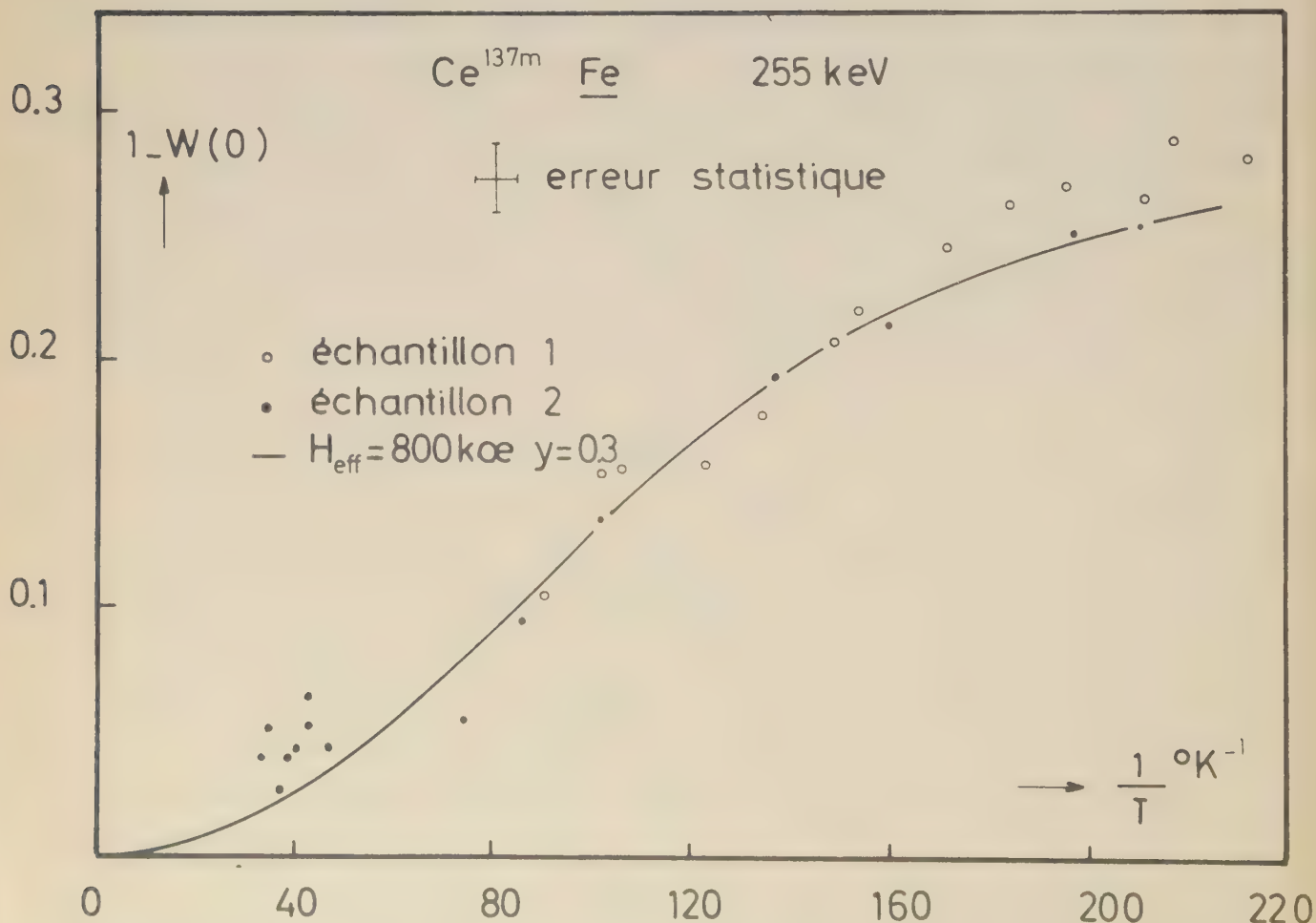


Figure VI. 6 - Courbe théorique et pointsexpérimentaux de la variation de l'anisotropie γ du $\text{Ce}^{137\text{m}}$ Fe en fonction de $1/T$. y est la proportion des noyaux de Ce soumis à l'orientation.

tillons ont été préparés dont les caractéristiques sont indiquées sur le tableau (VI.1).

Avant l'implantation, les cibles de fer sont soudées sur une lamelle de cuivre fin ($\sim 0,1$ mm). Cette lamelle est ensuite soudée sur le cryostat, l'échantillon lui-même étant maintenu dans l'azote liquide. Une étude préalable du praséodyme dans le fer⁽⁵⁴⁾ avait montré que cette précaution était indispensable si on voulait éviter tout effet de recuit.

Deux échantillons ont été refroidis jusqu'à une température de l'ordre de $0,005^\circ\text{K}$. L'anisotropie γ mesurée en fonction de la température le long de l'axe de polarisation est portée sur la figure (VI.6).

Analyse des résultats

On connaît sans erreur la valeur maximum qu'atteint l'anisotropie γ de la raie de 255 keV lorsque tous les noyaux sont complètement orientés, puisqu'elle ne dépend que du spin du niveau étudié. Or on observe expérimentalement que l'anisotropie tend vers une limite environ trois fois plus faible que la valeur prévue (et qui diminue si l'on soumet l'échantillon à un recuit même très faible ($\sim 300^\circ\text{C}$)). Par conséquent on doit supposer qu'un tiers seulement des noyaux de cérium subissent une orientation. Dans cette hypothèse et en prenant comme valeur du moment nucléaire $\mu = 0,7 \mu_N^{(55)}$, le champ hyperfin auquel sont soumis ces noyaux est de 800 koe. La grandeur de ce champ ne nous permet pas de conclure sur l'état d'ionisation du cérium.

D'autre part nos résultats montrent que le cérium occupe au moins deux sites : le premier, vraisemblablement substitutionnel, correspond au champ hyperfin mesuré ; le second pourrait correspondre à un site interstitiel, mais pour de simples raisons stériques il est plus probable que ce site est un site cristallin associé avec une lacune, l'ion cérium occupant le centre du volume offert⁽⁵⁷⁾. Lors d'un léger recuit ce nombre de sites particuliers pourrait augmenter, les cériums en position substitutionnelle ayant tendance à attirer des lacunes voisines, ce qui expliquerait la diminution de l'anisotropie constatée. Nous verrons dans le prochain paragraphe que des expériences Mössbauer faites sur des systèmes analogues au nôtre paraissent

3.2. L'ion implanté n'est pas soluble dans la matrice

L'expérience la plus significative semble être l'étude du Xe implanté dans le fer⁽⁵⁷⁾. Ce système a été étudié par effet Mössbauer. L'isotope mesuré est le Cs^{133} fils du Xe^{133} . Les doses sont de l'ordre de 10^{14} at/cm².

Les spectres obtenus montrent l'existence d'au moins deux sites, 40 % des ions implantés ayant un champ élevé (273 koe) et un grand déplacement isomérique ($\delta = -1,1$ mm/sec), les autres un champ faible (< 30 koe) et un faible déplacement isomérique ($-0,14$ mm/sec). Il y aurait probablement aussi des sites (~ 20 %) ayant un champ intermédiaire et un déplacement isomérique de $-0,63$ mm/sec. Lors d'un recuit, la proportion des sites à fort et moyen champ diminue considérablement. Une étude de la localisation des ions Xe par diffusion Rutherford d'ions canalisés⁽⁵⁸⁾ montre, comme dans le cas précédent, que les sites à fort champ hyperfin sont substitutionnels, et confirme que leur nombre diminue après recuit. (Ainsi d'ailleurs que par augmentation de la dose).

III - CONCLUSION -

Comme l'a fait remarquer De Waard⁽⁵⁷⁾, il semble qu'il existe une corrélation entre la solubilité et "l'implantabilité" dans des sites purement substitutionnels. En effet nous avons vu que lorsque un élément est implanté dans une matrice dans laquelle sa solubilité n'est pas nulle (AuFe, SbFe) les ions implantés sont tous en position substitutionnelle si la dose est suffisamment faible. Malheureusement la technique de l'implantation est alors d'un intérêt réduit. Elle permet toutefois d'obtenir des échantillons de très grande pureté : c'est ce qui nous a conduit à l'utiliser dans l'étude de Yb^{175}Au .

Si l'élément implanté n'est pas soluble dans la matrice, il semble que la difficulté d'obtenir que cet élément soit en position substitutionnelle croisse avec la différence de taille et d'électro-négativité de ces ions avec ceux de la matrice. Ainsi, si nous n'avons pas réussi à obtenir des sites uniques lors de l'implantation du cérium dans le fer, nous verrons que nous y sommes arrivés lors de l'implantation dans la même matrice d'ions moins volumineux comme Yb^{3+} ou le cadmium.

A différences de taille et d'électronégativité équivalentes, la nature du réseau joue un rôle important : nous montrerons que l'ytterbium ou le cadmium implantés dans le nickel (C.F.C.) occupent plusieurs types de sites à des doses pour lesquelles ils occupent un site unique dans le fer (C.C.).

Enfin il semble que le champ hyperfin des impuretés sp de taille plus grande que les ions de la matrice soit nettement plus grand quand ces impuretés sont implantées dans un site substitutionnel que dans un site qui ne l'est pas.

C H A P I T R E VII

MESURES DE TEMPS DE RELAXATION PAR ORIENTATION NUCLEAIRE

I - GENERALITES -

Une mesure de relaxation nucléaire par observation de l'anisotropie du rayonnement γ émis par des noyaux orientés fait intervenir trois temps caractéristiques :

- le temps de relaxation nucléaire T_1
- le temps de vie du noyau τ_n
- le temps d'observation T_0 qui est, dans notre cas, limité par la vitesse de réchauffement du sel paramagnétique avec lequel l'échantillon est en contact thermique.

On peut distinguer les différentes situations suivantes :

- a) $T_1 \ll T_0 \sim \tau_n$
- b) $T_1 \sim T_0 \ll \tau_n$
- c) $T_1 \sim \tau_n \ll T_0$

Les situations restantes : $T_0 \ll T_1 \sim \tau_n$, $\tau_n \ll T_0 \sim T_1$ et $T_0 \sim \tau_n \ll T_1$ ne donnent lieu à aucune évolution observable de l'anisotropie.

Nous présentons dans ce chapitre des expériences relatives au cas a, le Co^{60} dans le fer et le nickel, au cas b, le Zn^{65} dans le fer, et au cas c, l' Ag^{109m} dans le fer et le nickel. Nous verrons qu'à chacune de ces situations correspond une technique de mesure différente. Mais l'analyse des résultats utilise toujours les mêmes équations d'évolution des paramètres d'orientation B_k , qui traduisent la relaxation du système vers ses valeurs d'équilibre thermique sous l'effet d'un champ fluctuant.

Nous avons établi ces équations au chapitre III en supposant que le système de spins nucléaires est soumis à une interaction magnétique hyperfine statique et à une relaxation spin-réseau, mais en négligeant toute interaction spin-spin. Nous commencerons donc par discuter la validité de cette dernière hypothèse.

II - ABSENCE D'UNE TEMPÉRATURE DE SPIN

1° / Généralités

Le concept d'une température de spin unique, distincte de celle du réseau, est souvent utilisé en R.M.N. classique pour décrire l'évolution d'un système de spins nucléaires fortement couplés. Selon ce concept, on admet que les spins nucléaires forment un ensemble canonique défini par sa température T_S , et qu'il y a une faible interaction thermique de cet ensemble avec un réservoir, qui est ici le réseau, à la température T_L . Le retour à l'équilibre thermique de l'ensemble des spins est alors complètement décrit par l'équation d'évolution de T_S vers sa valeur à l'équilibre T_L .

Une telle description du système des spins nucléaires n'est valable que dans les limites où :

- les niveaux nucléaires sont équidistants
- les interactions entre spins nucléaires sont beaucoup plus fortes que les interactions entre ces mêmes spins et le réseau. En d'autres termes le temps caractéristique des échanges d'énergie entre spins $T_{\uparrow\downarrow}$ est beaucoup plus petit que celui des échanges d'énergie spin-réseau T_1 .

La première condition est vérifiée si l'hamiltonien principal est purement Zeeman, ce que nous supposons. Il s'agit donc maintenant d'évaluer $T_{\uparrow\downarrow}$ dans le cadre de nos expériences afin de pouvoir le comparer aux valeurs de T_1 mesurées. A cette fin nous emploierons la méthode dite "des moments". Cette méthode est décrite en détail dans les livres d'Abragam⁽²⁷⁾ ou de Slichter⁽⁵⁹⁾ et nous ne ferons ici qu'en rappeler les principaux résultats. Notons que cette méthode suppose une température infinie ($\frac{h\nu_n}{kT} \sim 0$), ce qui n'est pas vérifié dans les expériences d'orientation nucléaire. On peut cependant espérer que

les résultats seront suffisamment approchés pour nous permettre d'obtenir des ordres de grandeur indicatifs. Afin d'alléger les calculs, nous ne considérerons que le cas d'un spin 1/2.

Le moment d'ordre n est défini par

$$\langle \Delta \omega^n \rangle = \frac{\int_0^\infty (\omega - \langle \omega \rangle)^n f(\omega) d\omega}{\int_0^\infty f(\omega) d\omega} \quad (\text{VII.1})$$

où $f(\omega)$ décrit la courbe de résonance du système.

Soit W la probabilité de transition pour un renversement de spin mutuel entre deux spins sous l'effet de l'hamiltonien d'interaction $\mathcal{H}_{\text{int}}$, dont on suppose qu'il commute avec l'hamiltonien Zeeman. W s'écrit :

$$\begin{aligned} W &= \frac{1}{T_{\uparrow\downarrow}} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle + - | \mathcal{H}_{\text{int}} | - + \rangle|^2 \rho(\Delta E) \\ &= \frac{1}{2} \pi \omega_1^2 f(0) \end{aligned} \quad (\text{VII.2})$$

$$\text{où} \quad \omega_1 = \frac{2}{\hbar} \langle + - | \mathcal{H}_{\text{int}} | - + \rangle$$

D'autre part, que la courbe de résonance soit Lorentzienne ou Gaussienne, nous avons

$$f(0) \sim \frac{1}{\delta} \quad (\text{VII.3})$$

où δ est la largeur de raie à mi-hauteur, compte tenu de toutes les interactions entre spins nucléaires qui existent dans l'échantillon, qu'ils soient identiques ou différents. D'où :

$$\frac{1}{T_{\uparrow\downarrow}} \sim \frac{\omega_1^2}{\delta} \quad (\text{VII.4})$$

Nous allons calculer δ et ω_1 en supposant successivement que le mécanisme d'interactions entre spins est :

- l'interaction dipolaire

$$\mathcal{H}_d = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \left[\frac{\vec{\mu}_i \cdot \vec{\mu}_j}{r_{jk}^3} - \frac{3(\vec{\mu}_j \cdot \vec{r}_{jk})(\vec{\mu}_i \cdot \vec{r}_{jk})}{r_{jk}^5} \right] \quad (\text{VII.5})$$

- une interaction scalaire (échange ou Rudermann-Kittel)

$$\mathcal{H}_s = \sum_{ij} J \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (\text{VII.6})$$

- l'interaction de Suhl-Nakamura (couplage indirect entre deux spins nucléaires par l'entremise d'ondes de spins électroniques virtuelles)

$$\mathcal{H}_{ij} = - \frac{\hbar \omega_n}{2S} \frac{\omega_n}{4\pi \omega_{ex}} \frac{a}{r_{ij}} \exp\left(-\sqrt{\frac{\omega_0}{\omega_{ex}}} \frac{r_{ij}}{a}\right) (I_i^+ I_j^- + I_j^+ I_i^-) \quad (\text{VII.7})$$

ω_n est la pulsation de résonance nucléaire, ω_{ex} est la pulsation d'échange associée au couplage entre deux spins électroniques, a est la constante apparaissant dans la loi de dispersion des ondes de spin ($\omega_q = \omega_0 + \omega_{ex} a^2 q^2$), $\omega_0 \sim \gamma_e H_0$ est comparable à la pulsation du mode uniforme des spins électroniques. Comme C. Robert⁽⁶⁰⁾ nous l'a rappelé, cette interaction, quoique faible, a une très longue portée, et nous allons voir qu'à très grande dilution elle joue un rôle prédominant dans les mécanismes de flip-flop.

2° / Calcul des largeurs de raies δ

Il s'agit, dans une première étape, de relier les largeurs de raies δ aux moments. On peut montrer que si

- $\langle \Delta \omega^4 \rangle / \langle \Delta \omega^2 \rangle^2 \approx 3$, la courbe de résonance est approximativement gaussienne et $\delta \approx \langle \Delta \omega^2 \rangle^{1/2}$

- $\langle \Delta \omega^4 \rangle / \langle \Delta \omega^2 \rangle^2 \gg 1$, la courbe de résonance peut être approximativement décrite par une Lorentzienne tronquée (c'est-à-dire $f(\omega) = 0$ si $|\omega - \omega_0| > \alpha$) et

$$\delta = \frac{\pi}{2\sqrt{3}} \frac{\langle \Delta\omega^2 \rangle^{3/2}}{\langle \Delta\omega^4 \rangle^{1/2}} \quad (\text{VII.8})$$

Il faut maintenant calculer les moments. La partie séculaire de l'hamiltonien d'interaction entre spins identiques s'écrit⁽⁶¹⁾:

$$\mathcal{H}_{\text{int}} = \sum_{k>j} A_{jk} \vec{S}_j \cdot \vec{S}_k + \sum_{k>j} B_{jk} S_{zj} S_{zk} \quad (\text{VII.9})$$

Pour une interaction dipolaire pure, $B_{jk} = -3 A_{jk}$; pour une interaction scalaire pure, $B_{jk} = 0$, et pour l'interaction de Suhl-Nakamura $A_{jk} = -B_{jk}$.

Le calcul du second moment conduit à l'expression⁽⁶¹⁾ :

$$\langle \Delta\omega^2 \rangle = \frac{1}{3N^2} S(S+1) \sum_k B_{jk}^2 \quad (\text{VII.10})$$

Le quatrième moment peut s'écrire schématiquement :

$$\langle \Delta\omega^4 \rangle = \sum (B^2 B^2 + AB^3 + A^2 B^2) \quad (\text{VII.11})$$

les termes A et B sont des coefficients A_{jk} et B_{jk} de $\mathcal{H}_{\text{int}}$. On remarque qu'une interaction scalaire pure ne contribue ni au deuxième ni au quatrième moment.

Nous savons donc en principe relier δ à $\mathcal{H}_{\text{int}}$. Il reste à connaître la variation de δ avec la concentration en spins nucléaires.

Dans l'expression de $\langle \Delta\omega^2 \rangle$ il ne faut sommer que sur les sites k effectivement occupés. $\langle \Delta\omega^2 \rangle$ est donc proportionnel à la concentration c.

Dans l'expression de $\langle \Delta\omega^4 \rangle$ nous trouvons à la fois des termes de la forme $\sum_k B_{jk}^4$ proportionnels à c et des termes de la forme

$\sum_{kl} B_{jk}^2 B_{jl}^2$ proportionnels à c^2

$$\text{D'où} \quad \frac{\langle \Delta\omega^4 \rangle}{\langle \Delta\omega^2 \rangle^2} \propto \frac{uc + vc^2}{c^2} = \frac{u}{c} + v \quad (\text{VII.12})$$

Lorsque c tend vers 0 (cas de l'orientation nucléaire) le rapport $\langle \Delta\omega^4 \rangle / \langle \Delta\omega^2 \rangle^2$ tend vers l'infini. Aux grandes dilutions la

courbe de résonance devient donc une Lorentzienne de largeur de raie

$$\delta = \frac{\pi}{2\sqrt{3}} \frac{\langle \Delta\omega^2 \rangle^{3/2}}{\langle \Delta\omega^4 \rangle^{1/2}} \text{ proportionnelle à } c \quad (\text{VII.13})$$

Par conséquent, si $\sqrt{\langle \Delta\omega^4 \rangle}$ et $\langle \Delta\omega^2 \rangle$ pour le composé concentré à 100 % sont approximativement du même ordre, il vient :

$$\delta \sim \sqrt{\langle \Delta\omega^2 \rangle} c \quad (\text{VII.14})$$

Notons que nous n'avons considéré jusqu'à présent que les contributions à δ dues aux interactions entre spins nucléaires identiques. Mais à grande dilution on peut penser que la contribution la plus grande provient de l'interaction entre les spins nucléaires des impuretés et ceux de la matrice si ces derniers sont en quantité importante. Précisons cette idée par un calcul d'ordre de grandeur.

2.1. Interaction dipolaire entre spins d'impuretés

Nous avons :

$$\langle \Delta\omega^2 \rangle = 5,1 \gamma_I^4 \hbar^2 I(I+1) \frac{1}{d^6} \quad (\text{VII.15})$$

pour un réseau cubique simple et une concentration de spins égale à 100 %. On a couramment $\frac{\gamma}{2\pi} = 10^3$ Hz/gauss. D'où

$$(\sqrt{\langle \Delta\omega^2 \rangle})_{100\%} \approx 2 \cdot 10^4 \text{ rd/sec} \quad \text{soit si } c = 10^{-6} :$$

$$\sqrt{\langle \Delta\omega^2 \rangle} \approx \underline{2 \cdot 10^{-2} \text{ rd/sec}}$$

2.2. Interaction dipolaire entre spin d'impureté et spin de Fe^{57}

$$\langle \Delta\omega^2 \rangle_{100\%} = \frac{4\hbar^2}{9} \times 5,1 \times \gamma_I^2 \times \gamma_S^2 S(S+1) \frac{1}{d^6} \sim 4 \cdot 10^6 \text{ rd}^2/\text{sec}^2 \quad (\text{VII.16})$$

Or le Fe^{57} existe en concentration égale à 2,2 % dans le fer naturel :

$$\sqrt{\langle \Delta\omega^2 \rangle} \approx 2000 \times \frac{2}{100} = \underline{40 \text{ rd/sec}}$$

2.3. Interaction de Suhl-Nakamura entre spins d'impuretés

$$\langle \Delta \omega^2 \rangle_{100\%} = \frac{\pi I(I+1)}{6S^2} \frac{\omega_n^4}{\omega_{ex}^{3/2} \omega_o^{1/2}} \quad (\text{VII.17})$$

si $\nu_n \sim 200$ Mhz, $\nu_o \sim 3.10^3$ Mhz et $\nu_{ex} \sim 3.10^6$ Mhz, $I = \frac{1}{2}$ et $S = \frac{5}{2}$

$$(\sqrt{\langle \Delta \omega^2 \rangle})_{100\%} \sim 10^5 \text{ rd/sec}$$

Usuellement les spins nucléaires sont plus élevés, par exemple si

$$I = 7/2, (\sqrt{\langle \Delta \omega^2 \rangle})_{100\%} \sim 2.10^6 \text{ rd/sec}$$

soit si $c = 10^{-6}$

$$\sqrt{\langle \Delta \omega^2 \rangle} = 2 \text{ rd/sec}$$

2.4. Interaction de Rudermann-Kittel entre spin d'impureté et spin de Fe^{57}

On peut montrer que cette interaction contribue au deuxième moment (Abragam⁽²⁷⁾ p. 438). Si celle-ci s'écrit $\mathcal{H} = \sum_{ik} J_{ik} \vec{I}_i \cdot \vec{S}_k$

$$\langle \Delta \omega^2 \rangle_{100\%} = \frac{S(S+1)}{3} \sum_k J_{ik}^2 \quad (\text{VII.18})$$

où la sommation doit être faite sur les sites des spins S_k entourant le spin I_i . L'interaction de Rudermann-Kittel varie en $1/r^3$ comme l'interaction dipole-dipole et pour des spins premiers voisins :

$$J_{ik} \sim \hbar \frac{a_i a_k}{4E_F} \left(\frac{k_F R_{ik}}{2\pi} \right)^3 \quad \text{où} \quad a_i = \frac{16\pi}{3} \mu_B \hbar \frac{g \mu_{Ni}}{I} |\psi_A(0)|^2 \quad (\text{VII.19})$$

$|\psi_A(0)|^2$ est la densité électronique au noyau de l'atome et k_F le vecteur d'onde au niveau de Fermi.

Si $E_F \sim 10$ eV, $a \sim 0,5.10^{-16}$ erg et $\frac{k_F R_{ij}}{2\pi} \sim 1$, il vient

$$(\sqrt{\langle \Delta \omega^2 \rangle})_{100\%} \approx 6.10^3 \text{ rd/sec}$$

soit pour 2,2 % de Fe⁵⁷

$$\sqrt{\langle \Delta \omega^2 \rangle} \approx 6.10^3 \times \frac{2}{100} \approx \underline{120 \text{ rd/sec}}$$

Par conséquent on peut, dans le calcul de δ , ne considérer que les contributions dues aux interactions dipolaires et de Rudermann-Kittel entre spins d'impuretés et spins de Fe⁵⁷ ce qui conduit à un δ de l'ordre de 160 rd/sec (*).

3° / Calcul de la pulsation ω_1

3.1. Interaction dipolaire

Nous avons $(\omega_1)_{100\%} \sim \frac{\gamma^2 \hbar}{d^3}$ soit $\omega_1 \sim 10^3 \text{ rd/sec}$ (VII.20)

Si la concentration est égale à c, il faut remplacer d dans l'expression de ω_1 par r, distance moyenne entre deux spins. Or $c \sim d^3/r^3$ donc ω_1 sera multiplié par c

$$\text{si } \underline{c = 10^{-6}} \quad \omega_1 \sim \underline{10^{-3} \text{ Hz}}$$

3.2. Interaction de Suhl-Nakamura

$$(\omega_1)_{100\%} \sim \frac{2\omega_n^2}{2S \times 4\pi\omega_{\text{ex}}} \frac{a}{r_{ij}} \exp\left(-\sqrt{\frac{\omega_o}{\omega_{\text{ex}}}} \frac{r_{ij}}{a}\right) \quad (\text{VII.21})$$

soit pour une concentration égale à 100%, en prenant $a/r \sim 1$ et les mêmes valeurs numériques que précédemment

$$(\omega_1)_{100\%} \sim 3.10^3 \text{ rd/sec}$$

Si maintenant nous avons une concentration de spins nucléaires égale à c, ω_1 sera multiplié par $\frac{a}{r} \exp(-\sqrt{\frac{\omega_o}{\omega_{\text{ex}}}} \frac{r}{a})$ soit, comme

$$r = dc^{-1/3} \sim ac^{-1/3}$$

$$(\omega_1)_c = (\omega_1)_{100\%} \times c^{1/3} \exp\left(-\sqrt{\frac{\omega_o}{\omega_{\text{ex}}}} c^{-1/3}\right)$$

(*) Un calcul plus exact devrait tenir compte des termes croisés entre deux interactions.

soit si $c = 10^{-6}$ $\omega_1 \sim 1$ rd/sec et si $c = 10^{-7}$ $\omega_1 \sim 2 \cdot 10^{-2}$ rd/sec

4° / Calcul de $T_{\uparrow\downarrow}$

On suppose $\delta \sim 160$ rd/sec (voir ci-dessus)

Interaction dipolaire

$$c = 10^{-6} \quad T_{\uparrow\downarrow} \sim \frac{160}{10^{-6}} = 1,6 \cdot 10^8 \text{ sec}$$

Interaction de Suhl-Nakamura

$$c = 10^{-6} \quad T_{\uparrow\downarrow} \sim 160 \text{ sec}$$

$$c = 10^{-7} \quad T_{\uparrow\downarrow} \sim 5 \cdot 10^5 \text{ sec}$$

En définitive, il apparaît clairement que le mécanisme d'interactions entre spins le plus efficace aux très faibles concentrations est celui de Suhl-Nakamura. Nous devons donc comparer à T_1 la valeur de $T_{\uparrow\downarrow}$ due à ce mécanisme.

Nous avons vu au chapitre III que :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{\hbar \omega_n}{2 c_k k_B} \coth\left(\frac{\hbar \omega_n}{2 k_B T}\right) \text{ soit quand } T \rightarrow 0 \quad \frac{1}{T_1} \rightarrow \frac{\hbar \omega_n}{2 k_B c_k}$$

Une valeur courante de c_k est 1 sec°K, d'où si $\frac{\hbar \omega_n}{k_B} \sim 0,01^\circ\text{K}$ (ou $\mu = 1 \mu_N$ et $H_{\text{eff}} = 300$ koe) il vient $T_1 \lesssim 200$ sec.

Nous voyons donc qu'à $T = 0$, $T_{\uparrow\downarrow}$ peut être de l'ordre de T_1 si la concentration est égale à 10^{-6} , mais lui est bien supérieur pour des concentrations plus faibles. En conclusion il ne semble pas pouvoir exister de températures de spins à des concentrations inférieures à 10^{-6} .

Remarque : ce résultat a été obtenu pour des impuretés dans du fer, matrice caractérisée par une faible concentration en spins nucléaires portant de petits moments magnétiques, il en serait de même dans le nickel (1,25 % de moments). Par contre dans le cobalt la

largeur de raie due à la matrice serait beaucoup plus grande :

$\sqrt{\langle \Delta \omega^2 \rangle} \sim 3.10^4$ rd/sec et la concentration critique beaucoup plus élevée $c \sim 10^{-4}$. Rappelons enfin que l'interaction de Suhl-Nakamura n'existe que dans les corps magnétiques.

III - RELAXATION DU Co^{60} DANS LE FER ET LE NICKEL

1° / Méthode expérimentale

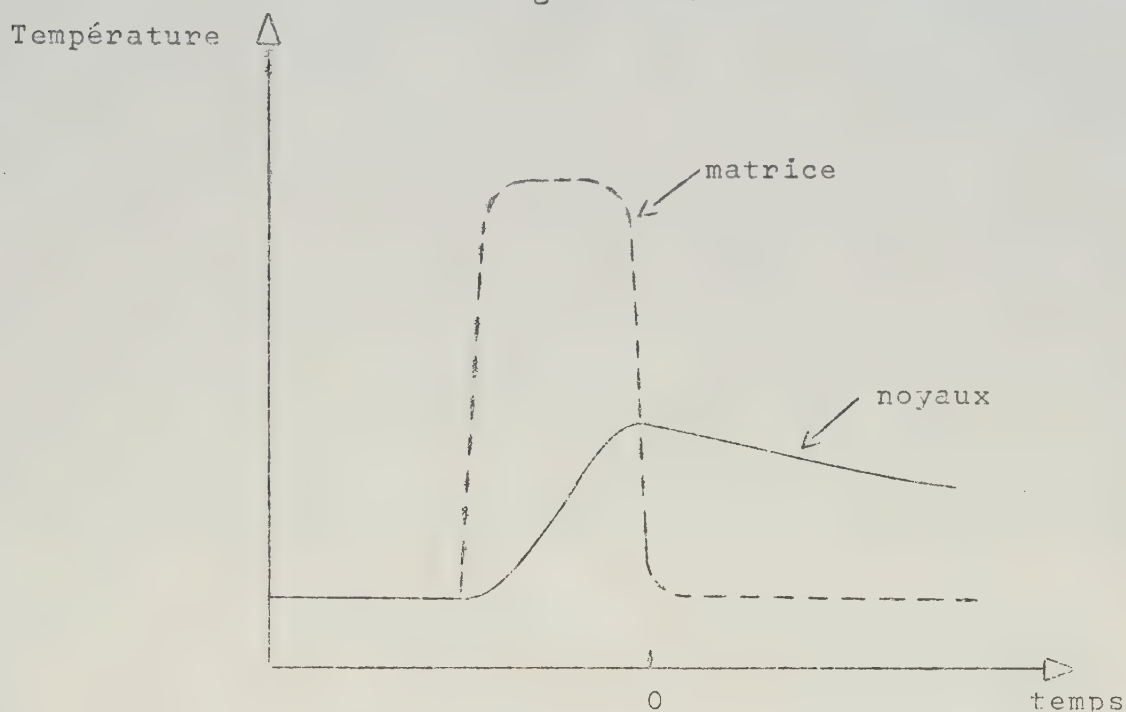
Le Co^{60} dans le fer fut le premier alliage ferromagnétique dilué dont le temps de relaxation ait été étudié à des températures de l'ordre de 10^{-2}°K . Dans ces expériences, on détruisait l'orientation des noyaux, réalisée à cette température, par un champ de radiofréquence, puis on observait la variation de l'anisotropie γ lors du retour à l'équilibre thermique des noyaux⁽⁶²⁾. On analysait les résultats en supposant d'une part l'existence d'une température de spin T_S , d'autre part que l'évolution de l'anisotropie était décrite par une simple exponentielle. Ces deux hypothèses ne nous semblant pas fondées, il nous a paru intéressant d'analyser des expériences similaires faites à Oxford par I.R.Williams et de comparer les résultats obtenus aux prédictions théoriques du modèle que nous avons développé au chapitre III.

La méthode expérimentale utilisée par I.R.Williams est la suivante : l'échantillon étant en équilibre thermique avec le sel paramagnétique, on le polarise en 5 secondes environ en lui appliquant un champ magnétique extérieur de 5 koe. Puis on observe l'apparition de l'anisotropie γ en stockant toutes les cinq secondes le nombre de γ émis à l'aide d'un analyseur multicanaux utilisé en multiéchelles.

L'établissement rapide du champ magnétique provoque dans la matrice des courants induits qui la portent à une température relativement élevée ($\sim 0,25^\circ\text{K}$). Par conséquent les spins nucléaires, initialement en équilibre à la température du sel ($\sim 1/200^\circ\text{K}$ par ex) vont relaxer vers cette nouvelle température de façon relativement rapide (une relaxation complète nécessiterait ~ 10 sec). Toutefois cette température n'est pas maintenue assez longtemps pour que les spins nucléaires atteignent un état d'équilibre. En effet, dès que le champ

magnétique est établi, la matrice revient à la température du sel en moins d'une seconde. On observe alors l'accroissement de l'anisotropie dû à la relaxation des spins nucléaires depuis l'état intermédiaire atteint précédemment et pris comme origine des temps jusqu'à l'état d'équilibre thermique avec la matrice. La figure VII.1 ci-dessous symbolise cet ensemble de processus. Pour une plus grande clarté du dessin nous décrivons l'état des spins nucléaires par une température.

Figure VII.1



Chaque point expérimental correspondant à un nombre de coups comptés pendant 5 sec, la précision relative des mesures est quelque peu limitée ($\sim 5\%$) si on la compare à celle qu'on obtient lors d'expériences d'orientation nucléaire statique. En effet on ne peut augmenter indéfiniment l'activité, car l'échantillon serait d'une part trop concentré (interactions entre spins), d'autre part difficile à refroidir (échauffement dû aux β émis).

Les sources sont préparées de façon classique par fusion dans une atmosphère d'hydrogène de lamelles de fer ou de nickel sur lesquelles a été déposé un film très mince de $^{60}\text{CoCl}_2$. Les concentrations finales sont inférieures à 10^{-6} .

2° / Analyse des résultats

Les anisotropies axiales des raies de 1,17 MeV et 1,32 MeV sont reportées sur un graphique en fonction du temps. La température du réseau, supposée constante après le temps $t = 0$, est déterminée par la valeur de l'anisotropie en fin d'expérience. Puis on résout l'équation d'évolution des coefficients B_k en supposant que les populations initiales des spins sont décrites par une température que l'on déduit de la valeur de l'anisotropie mesurée à $t = 0$. On ajuste le paramètre T_1 afin d'accorder les anisotropies calculées aux points expérimentaux. On voit sur les figures (VII.2) et (VII.3), qui représentent deux cas particuliers de cette analyse, que cet accord est très bon. On obtient donc finalement T_1 en fonction de la température T du réseau (Fig. VII.4). On constate que la variation de T_1 avec T suit correctement la loi que nous avons établie au chapitre III :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{\hbar \omega_n}{2c_k k_B} \coth \left(\frac{\hbar \omega_n}{2k_B T} \right) \quad (\text{VII.22})$$

où $c_k = 2,6 \pm 0,2 \text{ sec}^\circ\text{K}$ si $H_{\text{eff}} = 290 \text{ koe}$ pour $\text{Co}^{60}\underline{\text{Fe}}$,

et où $c_k = 0,5 \pm 0,05 \text{ sec}^\circ\text{K}$ si $H_{\text{eff}} = 120 \text{ koe}$ pour $\text{Co}^{60}\underline{\text{Ni}}$.

Toutefois il semble que c_k ait tendance à augmenter légèrement ($\sim 10 \%$) lorsque la température décroît de 0,02 à 0,005°K.

Le contraste entre notre figure (VII.4) et la figure (VII.5) tirée de l'article de Brewer et al.⁽⁶²⁾, citée plus haut, est frappant et provient de l'analyse que ces auteurs font de leurs résultats, analyse utilisant une seule exponentielle pour décrire les variations de l'anisotropie. Or comme nous l'avons montré au chapitre III, la variation temporelle des populations ou des coefficients B_k et donc de l'anisotropie γ observée dépend de plusieurs constantes τ_k

$$W(\theta) = W_{\text{eq}}(\theta) + \sum_1^{2I} a_k e^{-t/\tau_k} \quad (\text{VII.23})$$

Cependant, après un certain temps, l'évolution de W est dominée par la constante de temps la plus longue $\tau_{k\text{max}}$. Brewer et al. font

W

0.8

$$(1/T)_{\infty} = 186^{\circ}\text{K}$$

$$(1/T)_0 = 45^{\circ}\text{K}$$

— courbe théorique

○ points expérimentaux

 Co^{60}Fe

$$C = 2.8 \text{ sec } ^{\circ}\text{K}$$

0.6

0.4

100

200

300 t sec

Figure VII.2 - Points expérimentaux et courbe théorique de la variation de l'anisotropie γ du Co^{60}Fe en fonction du temps lors de la relaxation du Co^{60}



Figure VII.3 - Points expérimentaux et courbe théorique de la variation de l'anisotropie γ du Co^{60}Ni en fonction du temps lors de la relaxation du Co^{60} .



W

.9

$$(1/T)_{\infty} = 165$$

$$(1/T)_0 = 80$$

— theoretical curve

+ experimental points

.8

.7

.6

$$C = .5$$

 Ni Co^{60}

50

100

150

200

t sec

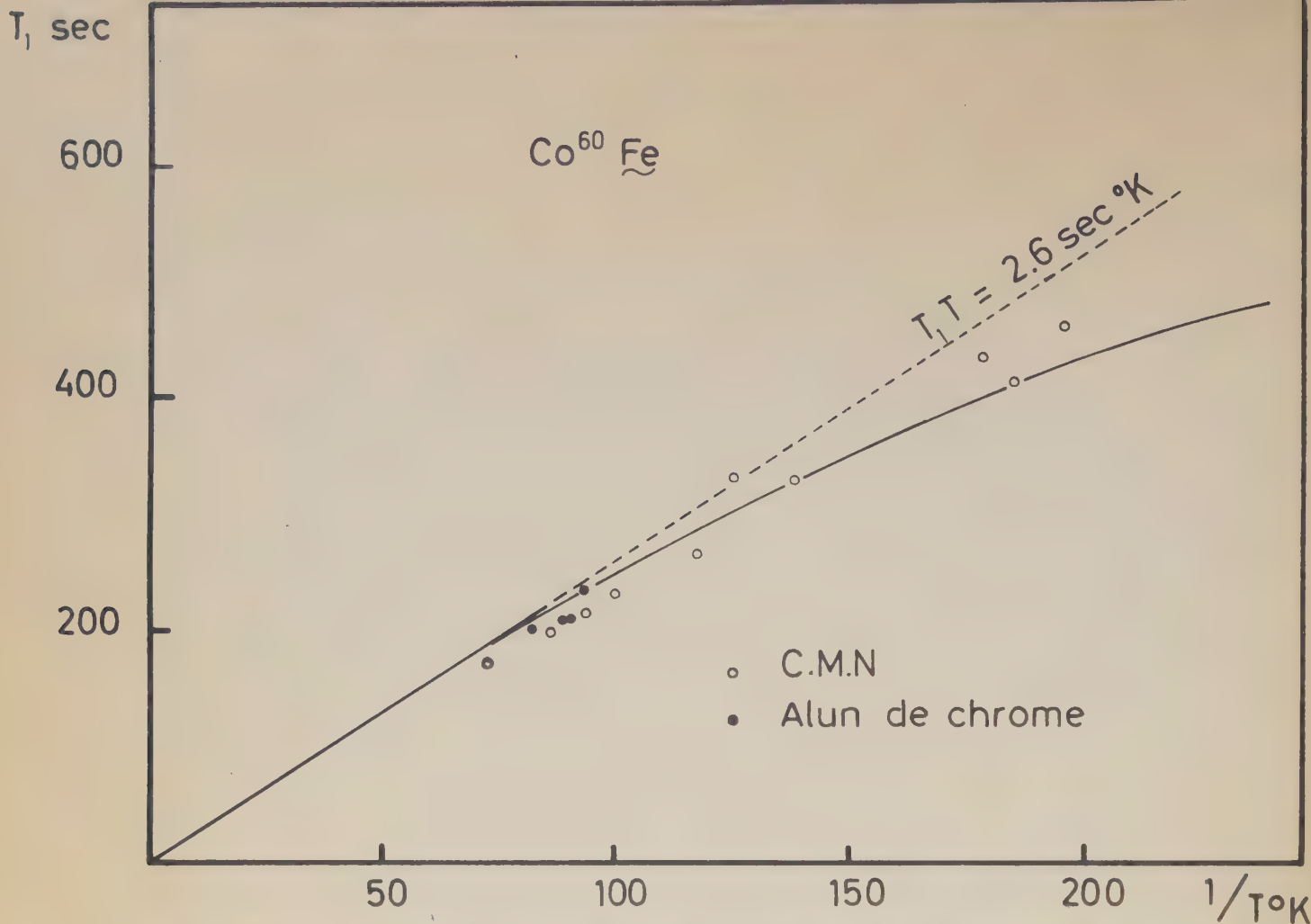


Figure VII. 4 - Courbe théorique et points expérimentaux de la variation de T_1 du Co^{60} dans le fer en fonction de $1/T$.

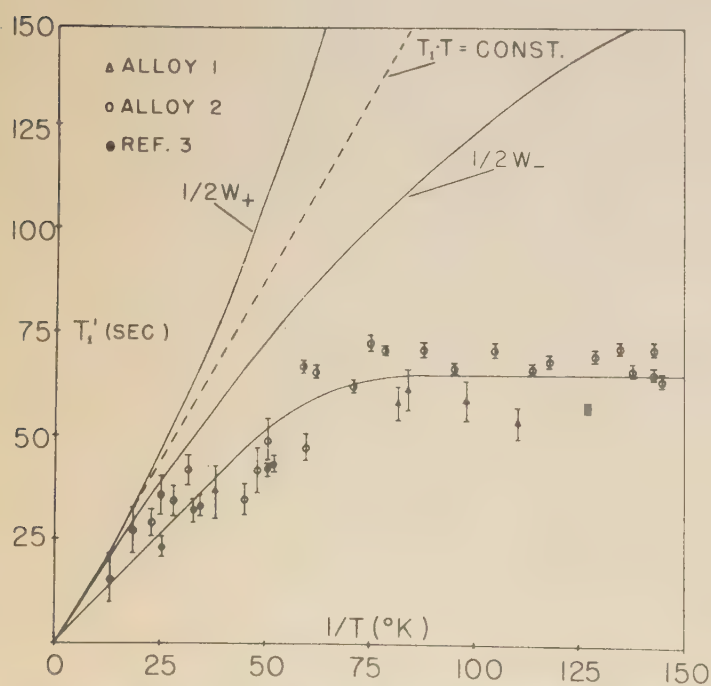
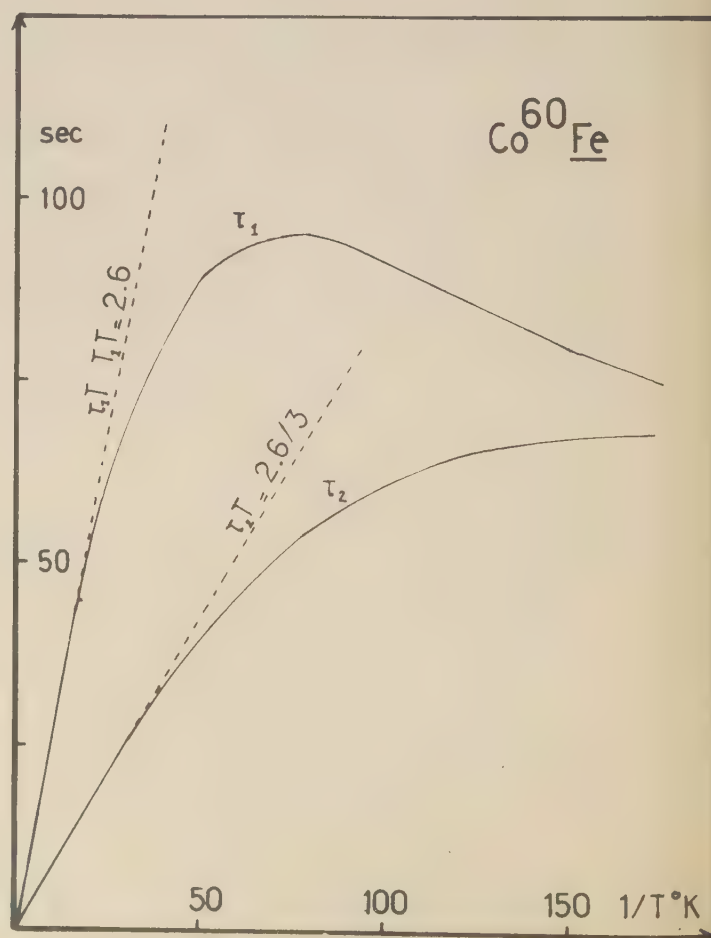


Fig. VII. 5 - Temps de relaxation T_1 observé du Co^{60} Fe en fonction de $1/T$. (Brewer (62))

Fig. VII. 6 - Les deux plus grandes constantes de temps τ_1 et τ_2 du Co^{60} Fe en fonction de $1/T$. (d'après nos expériences)



donc leur analyse en terme d'un paramètre proche de τ_{kmax} et non de T_1 . La figure (VII.6) montre la variation avec la température des deux plus longues constantes de temps τ_1 et τ_2 déduites de nos mesures sur le $Co^{60}Fe$. Les points expérimentaux de Brewer et al. se situent entre ces deux courbes.

IV - RELAXATION DU Zn^{65} DANS LE FER

1° / Méthode expérimentale

La relaxation du Zn^{65} dans le fer a été étudiée à l'aide de l'orientation nucléaire par O.A.Chilashvili et al.⁽⁶³⁾. Mais ces auteurs ont analysé leurs résultats en supposant d'une part l'existence d'une température de spin T_S , d'autre part que celle-ci variait en fonction du temps suivant la loi

$$\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_S}\right)_t = \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_S}\right)_0 e^{-t/\tau} \quad (VII.24)$$

où T est la température du réseau. Ces hypothèses nous semblant incorrectes, nous avons repris leurs résultats et avons essayé de les analyser à l'aide de notre théorie.

Les échantillons sont préparés par dépôt électrolytique de Zn^{65} puis de fer sur une feuille de fer et diffusion du Zn^{65} dans cette feuille par chauffage à $800^\circ C$ pendant 30 h. Les concentrations en Zn^{65} obtenues sont inférieures à 10^{-6} .

La méthode expérimentale utilisée est ici très simple. Le temps de relaxation du Zn^{65} dans le fer étant très long (~ 2 h) aux températures atteintes ($0,0035^\circ K$), on observe l'apparition de l'anisotropie axiale de la raie γ de 1,115 MeV en fonction du temps après la démagnétisation adiabatique, puis sa disparition au fur et à mesure du réchauffement inévitable du sel paramagnétique avec lequel l'échantillon est en contact thermique. On mesure la température de cet échantillon à chaque instant en utilisant comme thermomètre l'anisotropie de la raie γ de 835 keV du $Mn^{54}Cu$.

2° / Analyse des résultats

Les résultats expérimentaux sont reportés sur la figure (VII.7). Pour les analyser on suppose que T_1 varie en fonction de la température selon la loi (VII.22). On résout donc l'équation d'évolution des coefficients B_k en fonction du temps de la façon suivante : on prend la loi de variation temporelle de la température mesurée expérimentalement (avec $T = 1^\circ\text{K}$ pour $t < 0$) et on ajuste le champ hyperfin H_{eff} (qui n'est pas connu) et la constante de relaxation c_k de façon à faire coïncider courbe théorique et points expérimentaux. L'accord entre ces derniers est très satisfaisant pour

$$c_k = 11,4 \text{ sec}^\circ\text{K} \quad \text{et} \quad H_{\text{eff}} = 90 \pm 15 \text{ koe}$$

Ces chiffres ont été calculés en prenant les mêmes valeurs du moment nucléaire μ_N et du facteur géométrique $g_2 U_2 F_2$ que O.A. Chlashivili et al.⁽⁶³⁾ ($\mu = 0,7692 \text{ mn}$, $g_2 U_2 F_2 = 0,75$). Toutefois ils diffèrent quelque peu de ceux que donnent ces auteurs.

Notons que la valeur de H_{eff} donnée ci-dessus est en excellent accord avec une mesure récente par corrélation angulaire perturbée : de De Waard et al.⁽⁶⁴⁾ : $H_{\text{eff}} = -105 \pm 35 \text{ koe}$.

V - RELAXATION DE L'Ag^{109m} DANS LE FER ET LE NICKEL

1° / Généralités

La méthode utilisée pour la mesure du temps de relaxation du Co^{60} dans le fer n'est pas sans inconvénients. En particulier l'état initial du système avant la relaxation est mal connu.

Un système pour lequel cet inconvénient disparaît est le niveau isomérique de l'Ag¹⁰⁹, de période 40 sec, dans le fer ou le nickel. En effet celui-ci est obtenu soit par émission β à partir du Pd^{109} , soit par capture électronique à partir du Cd^{109} (Fig. VII.8). Le moment et les champs hyperfins dans le fer et le nickel de ce dernier isotope étant bien connus, la simple mesure de la température du réseau nous permet de calculer les populations initiales du Cd^{109} et par conséquent de son noyau fils l'Ag^{109m}. L'interaction hyperfine de l'Ag^{109m}

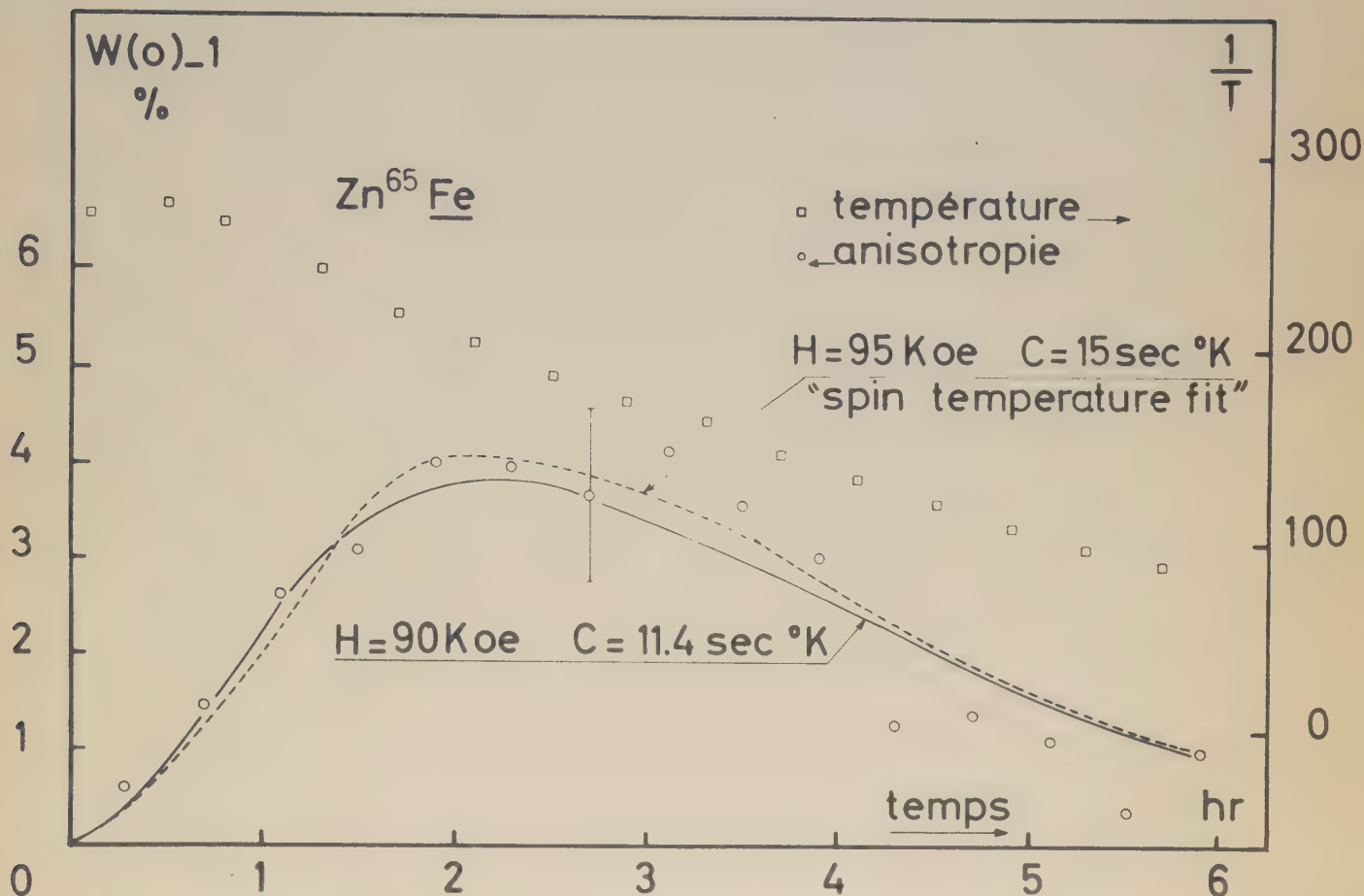


Figure VII. 7 - Points expérimentaux de l'anisotropie γ du Zn^{65}Fe et de la température du réseau en fonction du temps après une démagnétisation. Comparaison avec les courbes théoriques calculées par O.A. Chilashvili et al.⁽⁶³⁾ dans l'approximation d'une température de spin (--) et par nous même (—) dans l'hypothèse où les relaxations des noyaux Zn^{65} sont découplées.

Schéma de désintégration de $\text{Ag}^{109\text{m}}$

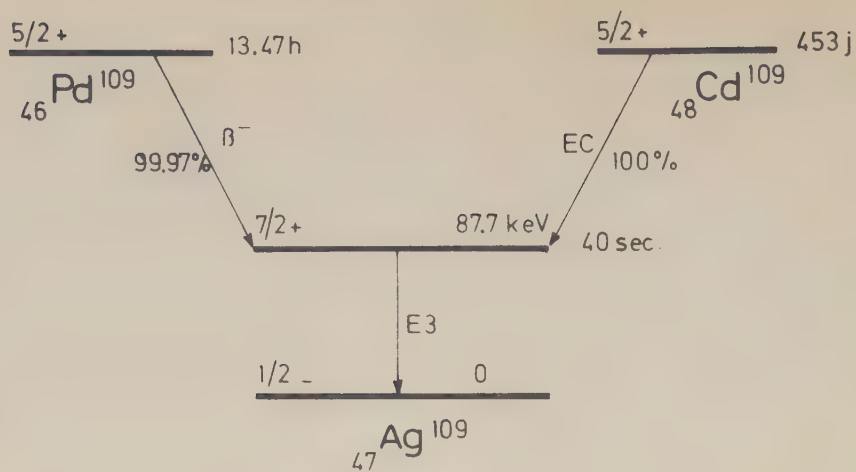


Figure VII. 8 -

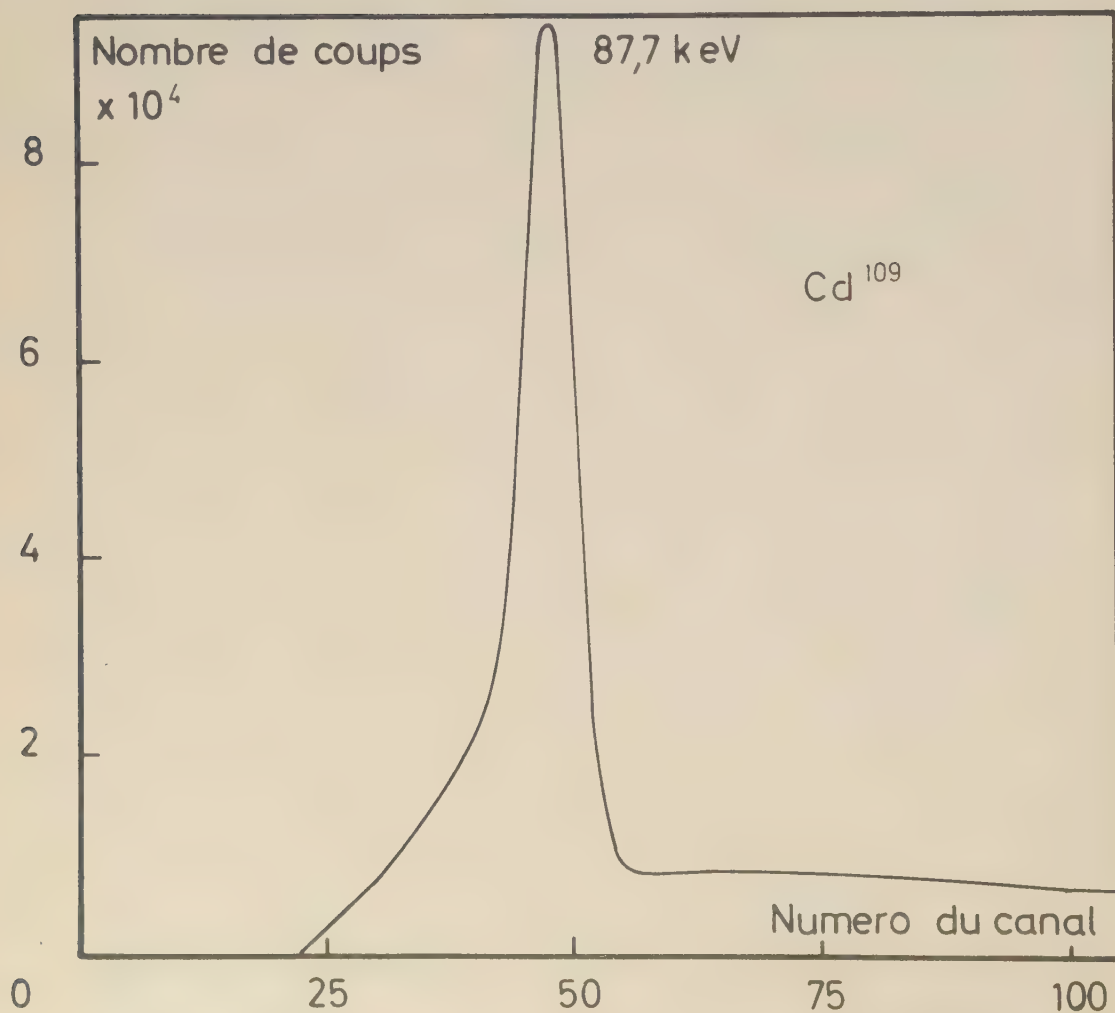


Figure VII. 8 bis - Spectre du Cd^{109}

(Le détecteur est un scintillateur NaI (Tl)).

ayant un signe opposé à celui du Cd^{109} (ou Pd^{109}), ces populations initiales se trouvent être très loin de l'équilibre thermique. Comme le temps de vie de $\text{Ag}^{109\text{m}}$ est comparable à son temps de relaxation aux températures auxquelles nous nous intéressons, la relaxation partielle des populations dans cet état intermédiaire perturbe très sérieusement l'anisotropie de la raie γ de 88 keV émise lors de la désexcitation de cet état.

Nous décrivons dans ce paragraphe des expériences d'orientation nucléaire du Cd^{109} dans le fer et dans le nickel que nous avons réalisées en collaboration avec R.A.Fox, P.D.Johnston et N.J.Stone et montrons que notre modèle de relaxation suffit à expliquer leurs résultats. On en déduit que la loi de variation de T_1 avec la température est bien celle que prédit la théorie.

Notons que Cracknell et Wilson⁽⁶⁵⁾ ont déjà rendu compte d'une expérience d'orientation nucléaire du Pd^{109} dans le fer. Mais ces auteurs supposent que la relaxation dans l'état intermédiaire est complète ce qui les conduit à déduire la valeur du champ hyperfin $H_{\text{eff}} = 336 \pm 20$ koe de l'anisotropie observée à la seule température $\frac{1}{T} = 60^\circ\text{K}^{-1}$. Cette valeur est beaucoup plus faible que celle qui a été obtenue très récemment par destruction résonnante de l'orientation de $\text{Ag}^{110\text{m}}$ dans le fer : $H_{\text{eff}} = 447 \pm 0,2$ koe. Ceci indique clairement que l'hypothèse d'une relaxation complète de $\text{Ag}^{109\text{m}}$ n'est pas justifiée, ce que nos propres expériences vont prouver.

Signalons enfin que la valeur du champ hyperfin déduite de l'orientation de $\text{Ag}^{110\text{m}}$ dans le fer par Shirley et al.⁽⁶⁶⁾ $|H_{\text{eff}}| = 282 \pm 20$ koe et Knott et al.⁽⁶⁷⁾ $H_{\text{eff}} = -250 \pm 6$ koe sont également trop faibles. Ceci est très vraisemblablement dû à une mauvaise préparation de l'échantillon.

2°/ Méthode expérimentale

2.1. Préparation des échantillons

Le cadmium étant réputé insoluble dans le fer et le nickel, nous avons préparé nos échantillons par implantation ionique. Le Cd^{109} est fourni par le C.E.A. sous forme de chlorure. C'est ce composé que

nous plaçons directement dans la source du séparateur, la température du four étant portée à $\sim 200^{\circ}\text{C}$. La tension accélératrice totale est de 100 kV, les marqueurs utilisés sont le Cd^{108} et le Cd^{110} également présents dans le chlorure actif. Les cibles de fer et de nickel sont fabriquées par fusion de zone.

Le parcours des ions Cd^{109} dans le fer pour une énergie de 100 keV est $R \approx 240 \text{ \AA}$ et l'écart quadratique moyen sur ce parcours est $\Delta R \approx 80 \text{ \AA}$. La concentration locale en Cd^{109} est d'environ 4.10^{-4} at/at ce qui conduit à une concentration d' $\text{Ag}^{109\text{m}}$ égale à 4.10^{-11} at/at . Le même calcul effectué pour le nickel conduit à des chiffres très analogues.

2.2. Paramètres de l'orientation et détails expérimentaux

Le moment nucléaire du Cd^{109} est connu avec précision et égal à $\mu = 0,829 \text{ m.n.}$ Nous supposons que ses champs hyperfins dans le fer et le nickel sont égaux à ceux du Cd^{111} mesuré par corrélations angulaires perturbées :

$$(H_{\text{eff}})_{\text{Cd}\underline{\text{Fe}}} = - 348 \pm 10 \text{ koe} \text{ et } (H_{\text{eff}})_{\text{Cd}\underline{\text{Ni}}} = - 68,6 \pm 15 \text{ koe}$$

Le moment nucléaire de l' $\text{Ag}^{109\text{m}}$ a été mesuré par jet atomique : $\mu = 4,31 \text{ m.n.}$ Ses champs hyperfins dans le fer et le nickel sont déduits après correction pour l'anomalie hyperfine, de valeurs obtenues par destruction résonnante de l'orientation nucléaire de l' $\text{Ag}^{110\text{m}}$ (68)

$$(H_{\text{eff}})_{\text{Ag}^{109\text{m}}\underline{\text{Fe}}} = - 441 \pm 5 \text{ koe} \quad (H_{\text{eff}})_{\text{Ag}^{109\text{m}}\underline{\text{Ni}}} = - 123 \pm 1 \text{ koe}$$

Les facteurs F de la transition E_3 de 88 keV de l' $\text{Ag}^{109\text{m}}$ sont

$$F_2 = 0,8132 \quad F_4 = 0,17904 \quad F_6 = 0,65279$$

Toutefois aux températures étudiées le terme B_6 peut le plus souvent être négligé.

Avant l'implantation, les échantillons sont soudés sur une lamelle de cuivre. Puis, l'implantation faite, ils sont montés sur le

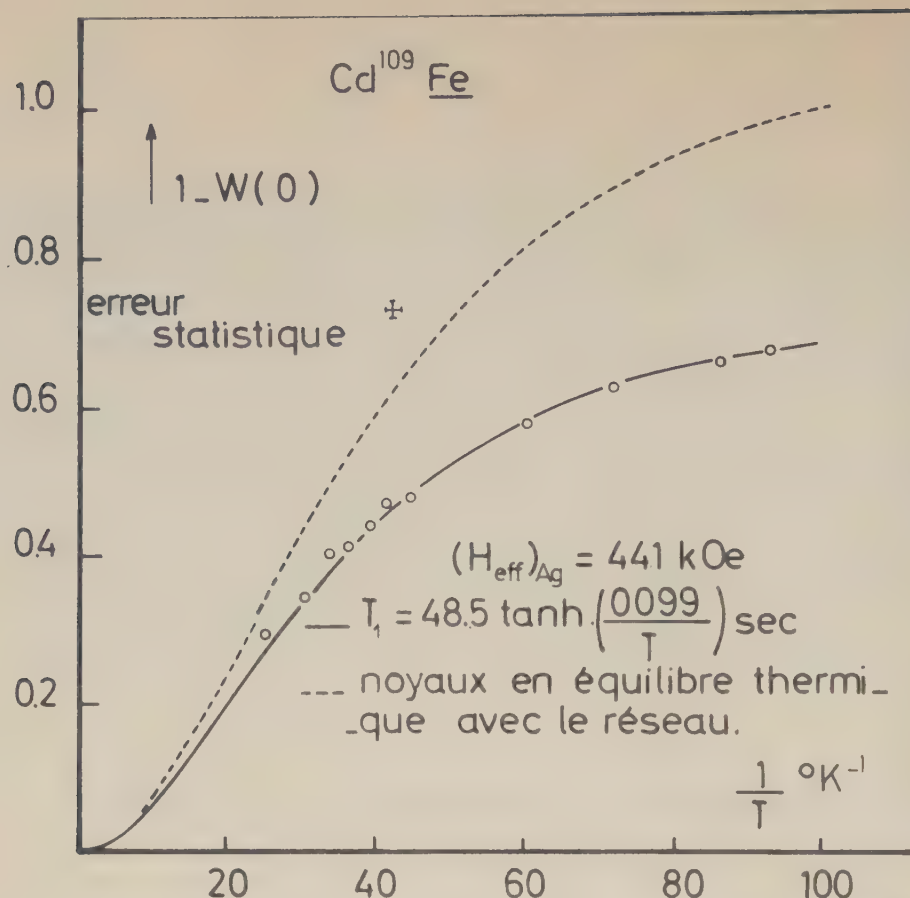


Figure VII. 9 - Variation de l'anisotropie du Cd^{109}Fe en fonction de l'inverse de la température. Comparaison des résultats expérimentaux (o) avec les courbes théoriques calculées en présence (—) et en l'absence (---) de relaxation.

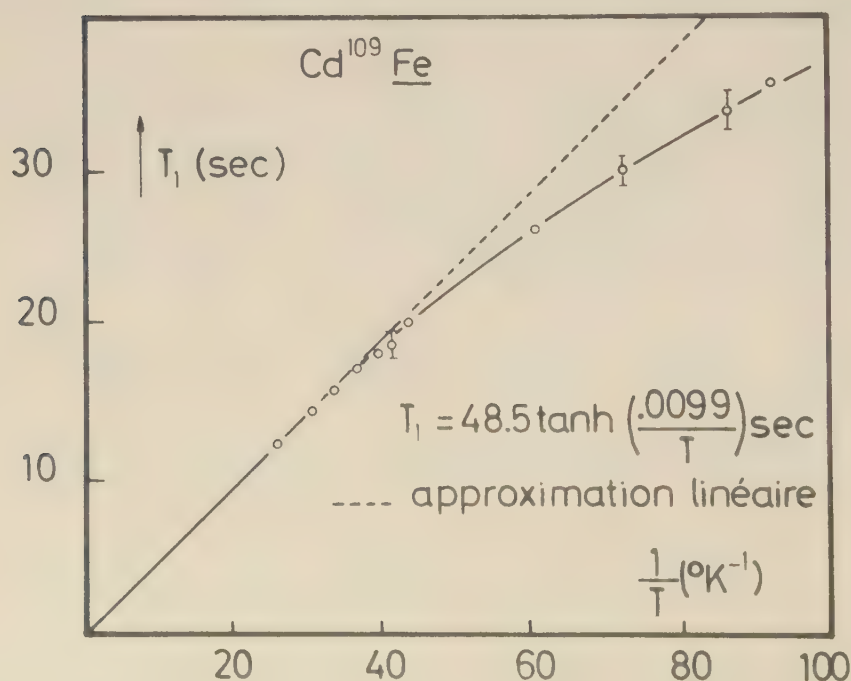


Figure VII. 10 - Variation de T_1 de $\text{Ag}^{109\text{m}}\text{Fe}$ avec l'inverse de la température.

cryostat par soudure de l'extrémité de la lamelle de cuivre, la cible elle-même étant conservée sous azote liquide.

5° / Les résultats

3.1. Cd^{109}Fe (relaxation de $^{109\text{m}}\text{Ag}$)

Deux échantillons d'activité voisine de 10 μC ont été fabriqués et l'anisotropie axiale de leur émission γ mesurée de $1/T = 25$ à $1/T=100^\circ\text{K}^{-1}$. L'un des échantillons présentait une anisotropie légèrement plus faible ($\sim 5\%$ d'écart relatif) que celle de l'autre, ce qui est probablement dû à des problèmes d'implantation. Cependant la "qualité" du meilleur échantillon semble excellente car

- l'analyse des résultats dans l'hypothèse d'un champ hyperfin unique, donne, comme nous allons le voir, un très bon accord entre théorie et expérience

- la même analyse effectuée sur un échantillon de $\text{Pd}^{109}\text{Fe}^{(*)}$, fabriqué de façon classique par diffusion, conduit aux mêmes valeurs du temps de relaxation. Ce système n'est toutefois pas pratique du point de vue expérimental en raison de la période relativement courte du Pd^{109} (13,5 h) et de son rayonnement β qui donne lieu à un bruit de fond important. Ce sont ces raisons qui nous ont conduit à utiliser le Cd^{109} plutôt que le Pd^{109} comme noyau de départ.

L'anisotropie axiale de la raie de 88 keV mesurée en fonction de la température sur le meilleur échantillon est reportée sur la Figure (VII.9). Elle est comparée à sa valeur calculée en supposant que les populations des niveaux nucléaires de l' $\text{Ag}^{109\text{m}}$ soient en équilibre thermique avec le réseau. L'écart frappant entre ces deux courbes montre bien que cette hypothèse n'est pas fondée.

Une analyse des résultats expérimentaux qui admettrait cette hypothèse conduirait d'ailleurs à une valeur du champ hyperfin qui serait fonction de la température.

(*) Rappelons que le Pd^{109} est également un noyau père de $\text{Ag}^{109\text{m}}$.

Afin de tenir compte du caractère partiel de la relaxation de l'Ag^{109m}, nous utilisons le résultat établi au chapitre III et qui correspond exactement au schéma de désintégration qui nous intéresse

$$W(\theta) = \sum_k \frac{1}{\tau} \int_{-\infty}^t dt' \exp(-(t-t')/\tau) B_k(t-t') F_k P_k(\cos \theta) \quad (\text{VII.25})$$

soit
$$W(\theta) = \frac{1}{\tau} \int_0^{\infty} dt \exp(-t/\tau) \sum_k B_k(t) F_k P_k(\cos \theta)$$

où τ est le temps de vie moyen de l'Ag^{109m}. Les coefficients $B_k(0)$ sont reliés aux coefficients B_k relatifs au cadmium par la relation (*)

$$B_k(0) = 4\sqrt{3} (-1)^{k+1} \left\{ \begin{matrix} 7/2 & k & 7/2 \\ 5/2 & 1 & 5/2 \end{matrix} \right\} (B_k)_{\text{Cd}^{109}} \quad (\text{VII.26})$$

On résout donc les équations d'évolution des paramètres $B_k(t)$ à chaque température en prenant comme unique paramètre la constante de relaxation c_k qui est reliée à T_1 par la relation (VII.22).

Les calculs sont faits à l'aide d'un ordinateur. On trouve finalement que l'accord entre points calculés et points expérimentaux est excellent pour $c_k = 0,48 \pm 0,03 \text{ sec}^\circ\text{K}$ (Fig. VII.9). La figure (VII.10) met en évidence l'écart entre la loi réelle de variation de T_1 avec la température et la loi valable à haute température $T_1 T = \text{constante}$.

Notons que cette expérience avait été entreprise avant que la valeur du champ hyperfin, H_{eff} , de l'argent n'ait été déterminée par résonance, ce qui nous avait conduit à ajuster à la fois H_{eff} et c_k . Nous avons trouvé $c_k = 0,48 \text{ sec}^\circ\text{K}$ et $H_{\text{eff}} = 440 \pm 40 \text{ koe}$ en excellent accord avec la valeur maintenant admise pour H_{eff} (441 koe).

(*) En fait nous avons calculé les $B_k(t)$ en résolvant le système d'équations d'évolution des populations de l'Ag^{109m} (cf. chap. III). Les populations "initiales" des niveaux de l'Ag^{109m} $p(0)$ sont alors déterminées en multipliant les populations des niveaux du Cd¹⁰⁹ par les probabilités de transition adéquates.

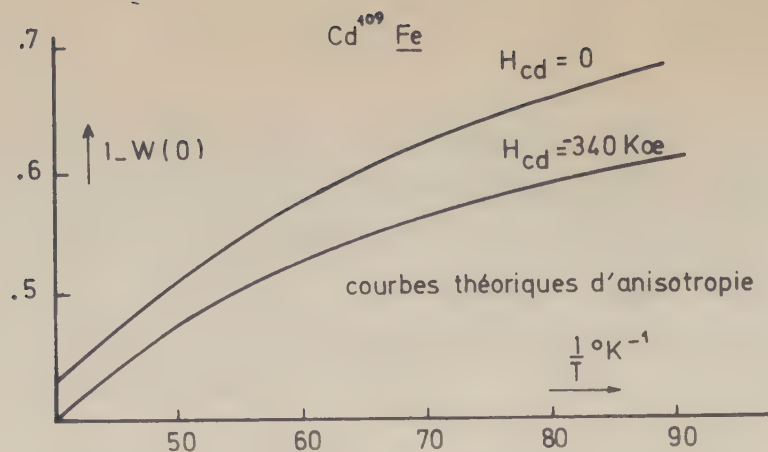


Figure VII. 11 - Anisotropie calculée du Cd^{109}Fe en fonction de l'inverse de la température ($H_{\text{Cd}} = 0$ équivaut à l'effet d'un champ R.F. saturant).

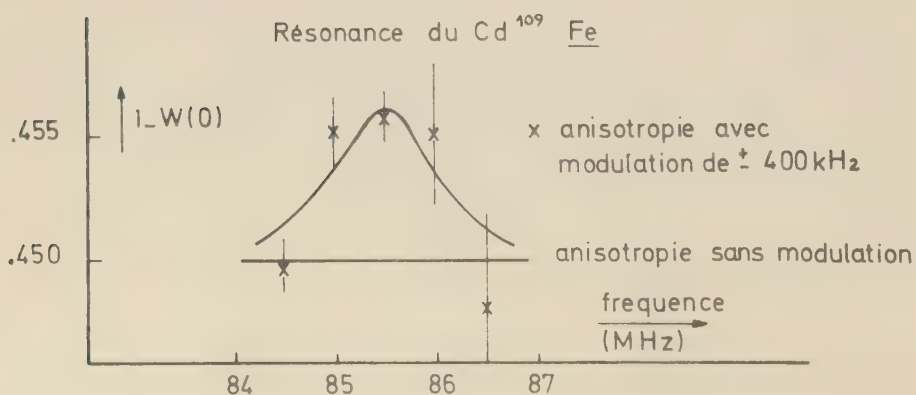
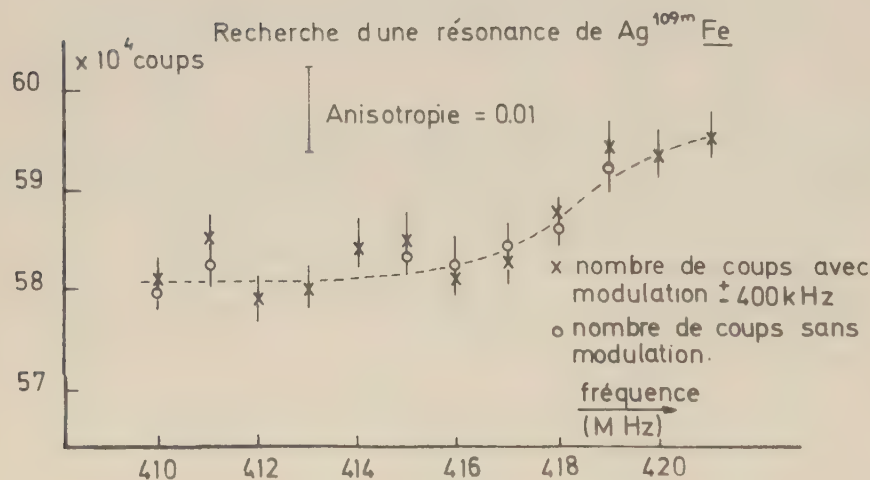


Figure VII. 12 - Anisotropie du Cd^{109}Fe en fonction de la fréquence du champ R.F. appliqué.

3.2. Recherches d'une destruction résonnante de l'orientation du Cd^{109} et de l' Ag^{109m} dans le fer

3.2.1. Cd^{109}Fe

Comme l'anisotropie de la raie de 88 keV dépend en partie de l'orientation initiale du noyau père Cd^{109} , on peut penser qu'il est possible d'observer un changement de l'anisotropie de cette raie lorsque l'on procède à une destruction résonnante de cette orientation du noyau père Cd^{109} . La figure (VII.11) précise cette idée : on y compare l'anisotropie obtenue lorsque le Cd^{109} est en équilibre thermique avec le réseau à l'anisotropie obtenue lorsque le Cd^{109} voit les populations de ses sous-niveaux nucléaires égalisées par le champ de radio-fréquence. On constate que l'on a effectivement un accroissement de l'anisotropie d'environ 7 % à $1/T=70^\circ\text{K}^{-1}$. La figure (VII.12) montre les résultats expérimentaux obtenus à cette température qui mettent en évidence une résonance proche de 85,5 MHz correspondant à un champ hyperfin de 340 koe, en excellent accord avec la valeur déjà citée pour le Cd^{111}Fe : 348 ± 10 koe. Quoique l'effet soit très petit, la statistique sur chaque point est suffisamment précise pour qu'on puisse conclure à l'existence d'une résonance. Les points expérimentaux indiqués sur la figure (VII.12) ont été obtenus par comparaison du nombre de coups enregistrés respectivement en présence et en l'absence de la modulation de la fréquence porteuse (la modulation était alternativement mise et enlevée toutes les 300 secondes)

3.2.2. $\text{Ag}^{109m}\text{Fe}$

Nous n'avons pas pu observer de destruction résonnante directe sur le noyau fils de Ag^{109m} (alors que l'expérience a pu être réussie pour Ag^{110m} comme nous l'avons déjà mentionné). Les raisons de cet insuccès ne sont pas, pour l'instant, comprises.

3.2.3. Cd^{109}Ni

Les deux échantillons de nickel étudiés avaient été placés, lors de l'implantation ionique, à côté des deux échantillons de fer dont nous venons de faire l'analyse. Ils ont donc reçu les mêmes doses de Cd^{109} que ces derniers.

Nous avons mesuré l'anisotropie axiale de la raie γ de 88 keV émise par ces échantillons dans un intervalle de température compris entre $1/T = 20$ et $1/T = 110^\circ\text{K}^{-1}$ (Fig. VII.13).

Nous avons essayé d'analyser ces résultats en utilisant la même méthode que celle que nous avons décrite au paragraphe précédent pour le Cd^{109}Fe . Comme dans ce dernier cas, le seul paramètre inconnu est la constante de relaxation c_k . Malheureusement aucune valeur de c_k ne conduit à un accord correct entre valeurs expérimentales et valeurs théoriques (Fig. VII.13). Il nous a paru très vraisemblable que cet échec était dû à l'existence de plus d'un seul champ hyperfin, correspondant à plus d'un type de sites. Nous avons donc repris notre analyse en supposant que seule une fraction y des noyaux était soumise à un champ hyperfin non négligeable et subissait une orientation. Un tel modèle, déjà utilisé dans ce travail pour le $\text{Ce}^{137\text{m}}\text{Fe}$, se réfère au système XeFe pour lequel il a été montré que seule la fraction des ions située dans des sites substitutionnels avait une interaction hyperfine importante (cf. chap. VI). Nous avons utilisé la valeur du champ hyperfin déterminée pour $^{110}\text{mAgNi}$ soit - 123 koe.

Nous obtenons ainsi un excellent accord entre courbes théoriques et points expérimentaux pour :

échantillon I : $y = 28 \pm 2\%$ $c_k = 0,25 \pm 0,1 \text{ sec}^\circ\text{K}$

échantillon II : $y = 30 \pm 2\%$ $c_k = 0,25 \pm 0,1 \text{ sec}^\circ\text{K}$

La relaxation de l' $\text{Ag}^{109\text{m}}$ semble donc plus rapide dans le nickel que dans le fer, comme dans le cas du Co^{60} .

VI - CONCLUSION -

Nous avons montré que le modèle établi au chapitre III explique, de façon satisfaisante, toutes les expériences de relaxation auxquelles nous nous sommes intéressé. Dans chacun de ces cas, et en particulier pour l' $\text{Ag}^{109\text{m}}\text{Fe}$, il a été prouvé, dans la limite de précision des expériences, que la loi de variation de T_1 avec la température a la forme que nous avons prédite. Il reste maintenant à préciser le mécanisme responsable de la relaxation nucléaire. Cependant nos résultats semblent montrer que ce mécanisme est un mécanisme "direct" qui met probablement en cause les électrons de conduction.

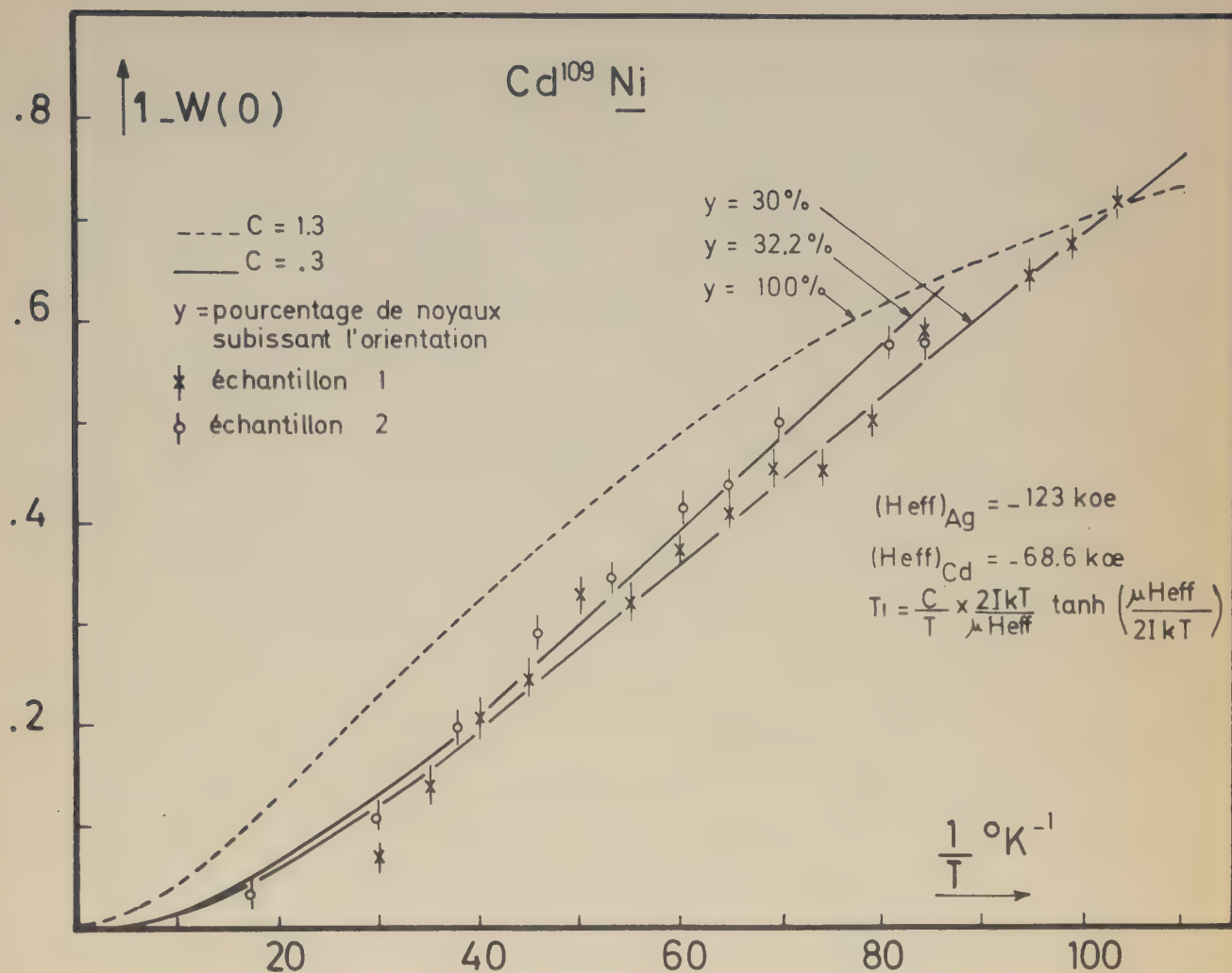


Figure VII. 13 - Variation de l'anisotropie du $\text{Cd}^{109} \text{Ni}$ avec l'inverse de la température. Comparaison avec les courbes théoriques calculées.

Schéma de désintégration Yb^{175}

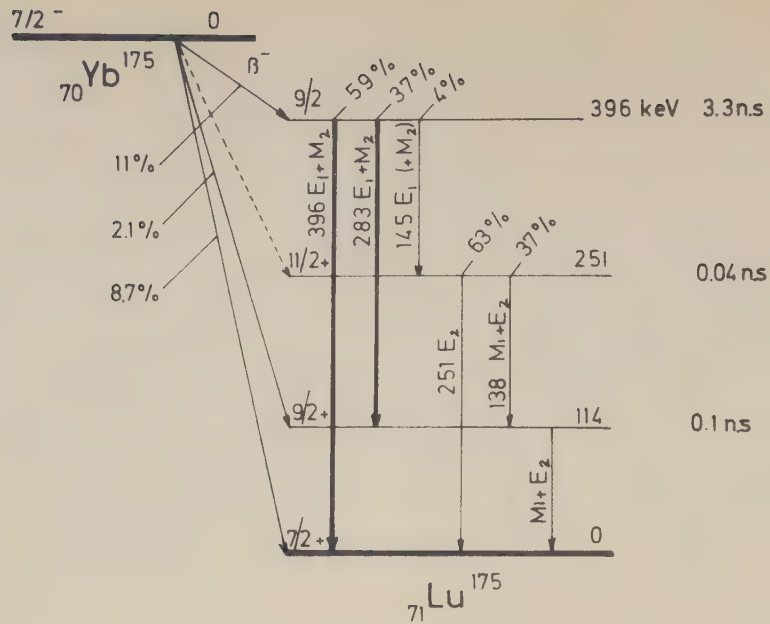


Figure VIII. 1 -

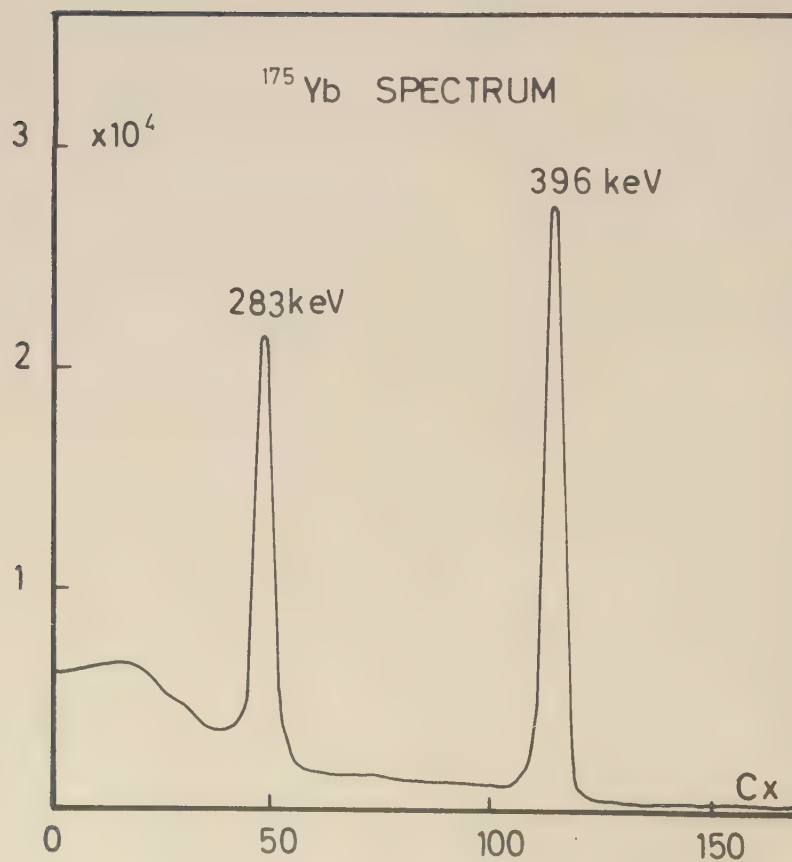


Figure VIII. 1 bis - Spectre de ^{175}Yb
(détecteur au germanium (Li)).

CHAPITRE VIII (*)

ORIENTATION DE L'Yb¹⁷⁵ DANS L'OR, L'ARGENT, LE FER ET LE NICKEL

I - INTRODUCTION -

1° / Généralités

Dans l'ensemble des terres rares, l'ytterbium partage avec le cérium et l'euporium la particularité de pouvoir exister sous deux états de valence différents dans un environnement métallique. L'état divalent de l'ytterbium correspond à un remplissage complet de la couche f et n'est pas magnétique. Par contre, dans l'état trivalent, l'ytterbium ne possède que 13 électrons f, ce qui lui confère un moment magnétique et un fort champ hyperfin de provenance essentiellement orbitale. De plus, dans un environnement de symétrie non cubique, ces électrons produisent un gradient électrique quadrupolaire sur le noyau. Ce gradient devrait être facile à détecter. En effet, une recherche systématique des moments quadrupolaires des noyaux voisins de l'Yb¹⁷⁵, montre qu'en moyenne ceux-ci sont grands.

Nous décrivons dans ce chapitre les résultats que nous avons obtenus par orientation de l'ytterbium¹⁷⁵ dans l'or, l'argent, le fer et le nickel. Nous montrons en particulier que la valeur du moment nucléaire de l'état fondamental de l'Yb¹⁷⁵ admise jusqu'à présent ($\mu = 0,15 \pm 0,03$ m.n) et déduite d'une expérience d'orientation de cet isotope dans l'éthylsulfate, est erronée. Nous présentons toutefois une nouvelle analyse de cette expérience, qui conduit à une valeur du moment nucléaire $\mu = 0,27 \pm 0,01$ m.n, compatible avec celle qui se déduit de nos propres expériences.

2° / Schéma de désintégration de l'Yb¹⁷⁵

Le schéma de désintégration de l'Yb¹⁷⁵ est indiqué sur la figure (VIII.1). Les deux transitions étudiées sont celles de 283 keV

(*) Les expériences présentées dans ce chapitre ont été faites en collaboration avec J.D.Marsh et N.J.Stone.

et de 396 keV. Elles sont toutes deux de type E1 avec un léger mélange de M2. Les valeurs des coefficients de mélange sont déduites d'expériences de corrélations angulaires électron de conversion - γ , dans lesquelles les effets de pénétration des électrons atomiques lors du processus de conversion interne ont été pris en considération⁽⁷²⁾. Ces coefficients sont :

$$\delta_{283} = - 0,053 \pm 0,01$$

$$\delta_{396} = + 0,100 \pm 0,015$$

Le premier est très différent du coefficient utilisé par Grace et al. ($\pm 0,17$) dans leur analyse de l'alignement de l'ytterbium dans l'éthylsulfate.

On en déduit les valeurs des paramètres U_2F_2 et U_4F_4 pour chacune de ces transitions :

$$\begin{cases} U_2F_2(283 \text{ keV}) &= - 0,3760 \\ U_4F_4(\quad " \quad) &= - 0,0011 \end{cases}$$

$$\begin{cases} U_2F_2(396 \text{ keV}) &= + 0,1058 \\ U_4F_4(\quad " \quad) &= + 0,0058 \end{cases}$$

Nous avons supposé $j_\beta = 1$ pour la transition β .

II - ORIENTATION DE L'YTTERBIUM DANS L'OR

1° / Généralités

Des expériences de susceptibilité⁽³⁾⁽⁴⁾ et de RPE⁽⁷³⁾ ont montré que l'ytterbium était magnétique dans l'or, c'est-à-dire à l'état trivalent.

Leurs auteurs ont analysé ces expériences en supposant que l'ytterbium est soumis à un champ cristallin cubique.

$$\begin{aligned} V_c &= B_4(O_4^0 + 50 \frac{4}{4}) + B_6(O_6^0 - 210 \frac{4}{6}) = B_4O_4 + B_6O_6 \\ &= W \{ x \frac{O_4}{F(4)} + (1 - |x|) \frac{O_6}{F(6)} \} \end{aligned}$$

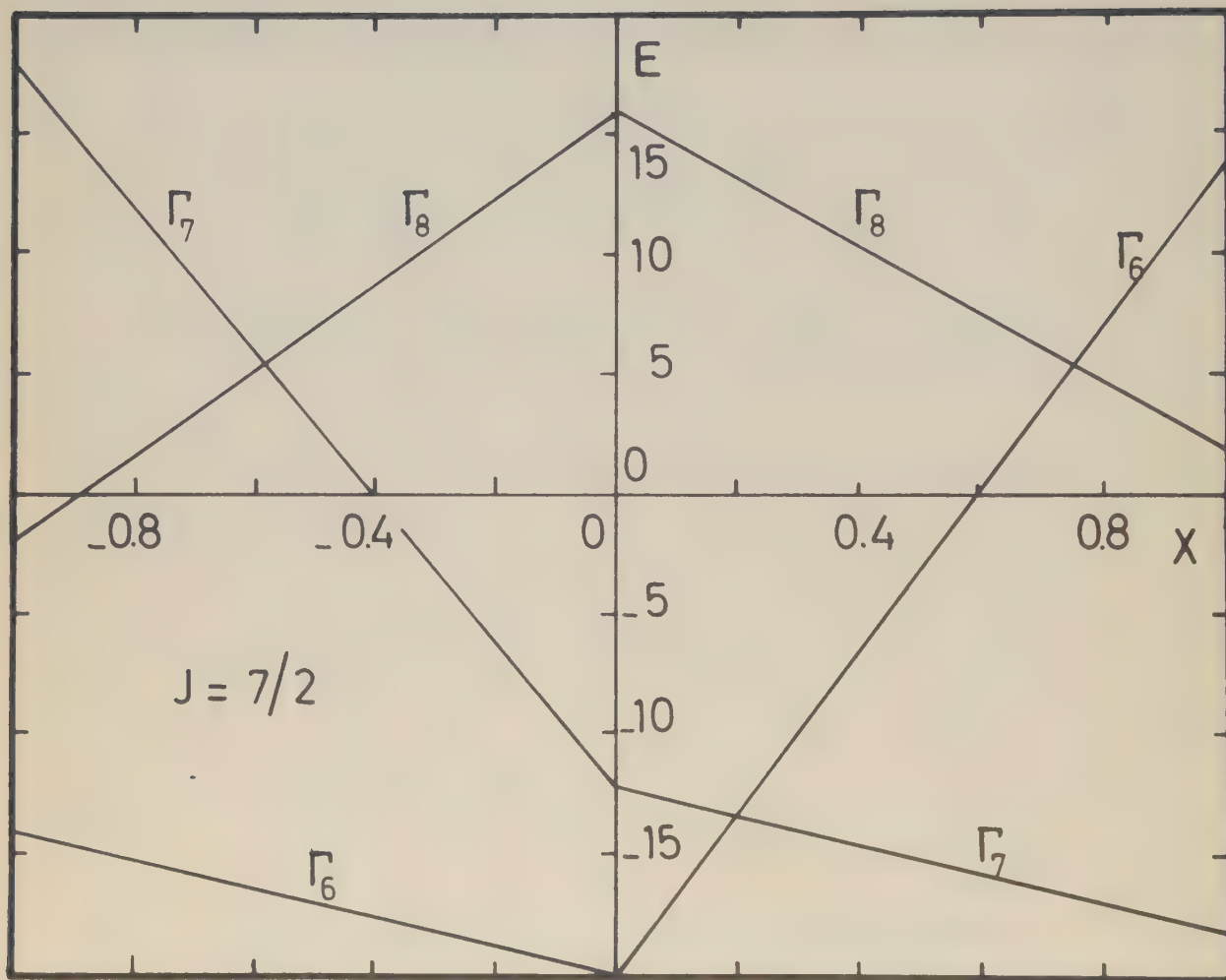


Figure VIII. 2 - Niveaux électroniques de l'Ytterbium dans un champ cristallin cubique.

Ce champ $V_c^{(*)}$ a pour effet de lever partiellement la dégénérescence de la multiplicité $J = 7/2$ de l'ytterbium, les nouveaux niveaux étant deux doublets Γ_6 et Γ_7 et un quadruplet Γ_8 . Les énergies relatives en fonction de x de ces multiplets ont été calculées par Lea Leask et Wolf⁽⁷⁴⁾ et sont reportées sur la figure (VIII.2).

Les mesures de susceptibilité permettent de déterminer les paramètres B_4 et B_6 , d'où l'on déduit la valeur de x . Nous reproduisons ci-dessous les valeurs indiquées dans les réf. (3) et (4).

G.Williams et al.⁽³⁾ $x = 0,77$ "splitting" total : 83°K

Murani⁽⁴⁾ $x = 0,74$ "splitting" total : $93,7^\circ\text{K}$.

Ces valeurs concourent à montrer que le niveau fondamental de l'ytterbium dans l'or est Γ_7 , en accord avec les résultats précédents d'une expérience de R.P.E.⁽⁷³⁾.

En négligeant les effets des électrons de conduction, on peut, quand on connaît la nature du niveau électronique le plus bas, prédire la valeur du champ hyperfin de l'ytterbium dans l'or. En effet le champ hyperfin de l'ion libre Yb^{3+} ($J_z = 7/2$) a été déterminé expérimentalement par Baker et al.⁽⁷⁵⁾ et vaut :

$$(H_{\text{eff}})_{\text{ion libre}} = 4,12 \text{ Moe}$$

En présence d'un champ magnétique extérieur H_0 qui lève la dégénérescence des deux sous-niveaux de Γ_7 et à une température telle que $g_{\Gamma_7} \mu_B H_0 \ll kT$, nous avons dans le niveau fondamental $\langle J_z \rangle = 3/2$, d'où, si l'on admet que le champ hyperfin est proportionnel à $\langle J_z \rangle$ (cf. chapitre I)

$$(H_{\text{eff}})_{\Gamma_7} = 1,77 \text{ Moe}$$

(*) Les quantités O_4 et O_6 sont des équivalents opératoriels dont les éléments de matrice sont tabulés dans les Appendices du livre d'Abragam et Bleaney⁽¹⁾. $F(4)$ et $F(6)$ sont des coefficients constants également tabulés par ces auteurs.

Il était intéressant de comparer cette valeur estimée à celle que donne l'expérience. Nous avons effectué à cette fin une expérience d'orientation de ^{175}Yb dans l'or. Une première analyse de nos résultats a montré qu'en utilisant la valeur du moment nucléaire de ^{175}Yb donnée par les tables ($\mu = 0,13 \pm 0,03$), le champ effectif trouvé était beaucoup plus grand que prévu ($H_{\text{eff}} = 3,7 \text{ Moe}$). Nous avons alors soupçonné que la valeur du moment nucléaire utilisé était trop petite. Cette valeur avait été déduite d'une expérience d'alignement de ^{175}Yb dans l'éthylsulfate (Grace et al.⁽⁷⁶⁾). Nous avons donc procédé à une nouvelle analyse de cette expérience que nous présentons au paragraphe suivant, et qui a donné une valeur du moment beaucoup plus grande ($\mu = 0,27$). La valeur du champ effectif de l'ytterbium dans l'or devenait alors : $H_{\text{eff}} = 1,8 \text{ Moe} \pm 0,05$, en excellent accord, aux erreurs expérimentales près, avec la valeur prédite.

Très récemment Tao et al.⁽⁹⁾ ont réalisé une expérience de R.P.E. grâce à laquelle la structure hyperfine de l'ytterbium¹⁷¹ dans l'or a pu être observée avec une précision supérieure à la nôtre. Le moment magnétique de cet isotope dans l'état fondamental étant connu, ils en déduisent le champ effectif suivant : $H_{\text{eff}} = 1,80 \text{ Moe}$ (en accord avec notre estimation antérieure). Cette valeur met en évidence une légère contribution (+ 30 koe) des électrons de conduction au champ hyperfin.

Dans ce paragraphe nous présentons donc une nouvelle analyse de nos résultats dans laquelle la valeur du champ hyperfin est considérée comme connue et égale à celle qu'ont mesurée Tao et al. et où la quantité à déterminer est le moment nucléaire de ^{175}Yb .

2° / Préparation des échantillons

Les échantillons sont préparés par implantation ionique. ^{175}Yb est formé par réaction (n, γ) sur ^{174}Yb qui constitue 31,8 % de l'ytterbium naturel. La section efficace de cette réaction est de 9b. Le produit irradié est l'oxyde Yb_2O_3 de pureté 5N, préparé par Johnson Matthey. Une irradiation typique dure 48 h sous un flux de neutrons thermiques égal à $2 \cdot 10^{13} \text{ n/sec}$ et s'applique à 8 mg d'oxyde. L'activité en ^{175}Yb recueillie est de 60 mCie, l'activité parasite en ^{169}Yb étant de 13 mCie.

L'oxyde d'ytterbium irradié est placé directement dans la

Figure VIII. 3 - Courbe théorique et points expérimentaux de l'anisotropie de la raie de 283 keV de $^{175}\text{Yb Au}$ en fonction de l'inverse de la température. La courbe théorique correspond à $\mu = 0,277 \text{ m.n.}$, $H = 1,86 \text{ Moe}$, $P = -1,8.10^{-5} \text{ } ^\circ\text{K.}$

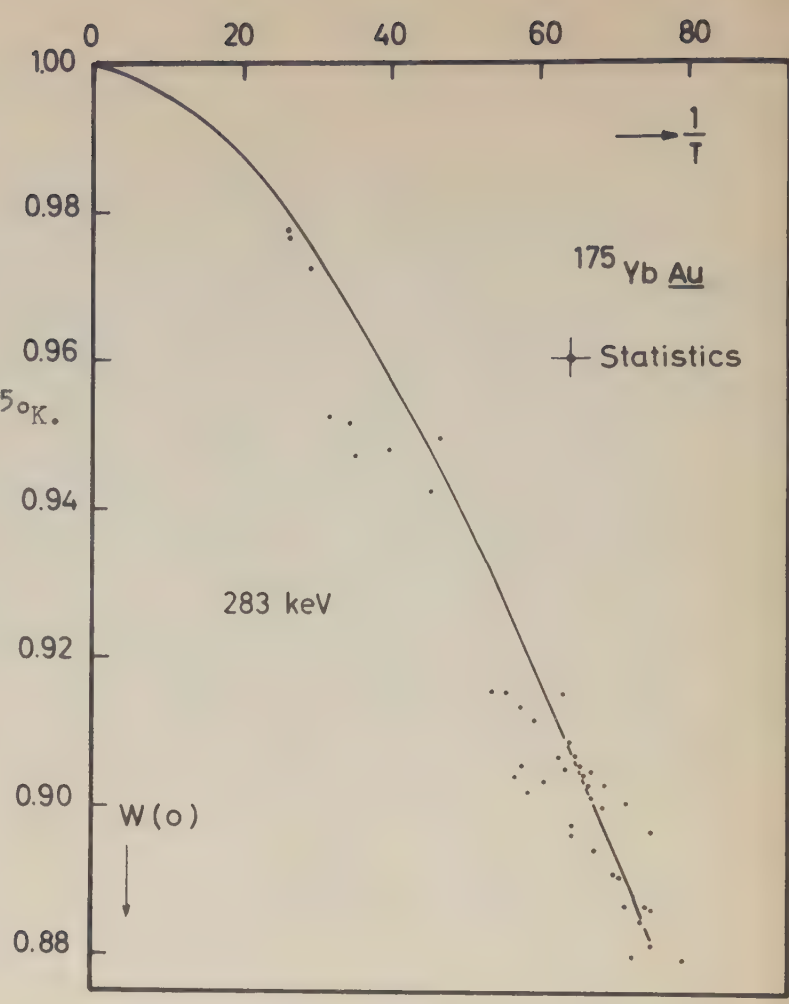
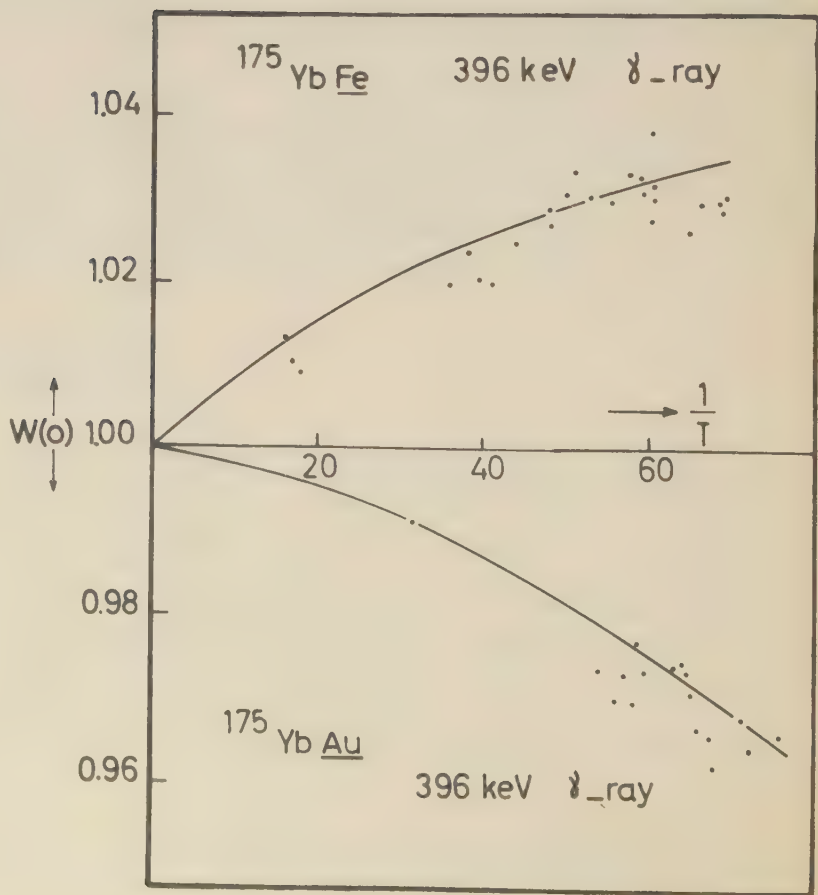


Figure VIII. 4 - Courbe théorique et points expérimentaux de l'anisotropie de la raie de 396 keV de ^{175}Yb dans le fer et l'or. La courbe théorique correspond à $\delta_{396} = 0,1$.



source du séparateur et chloruré à l'intérieur même par un faible courant de CCl_4 . La température du four est d'environ 700°C . On utilise le Xe comme entraîneur.

Les ions ytterbium sont implantés dans une matrice d'or polycristallin de pureté 6N sous une énergie d'environ 100 keV. Le parcours des ions non canalisés à cette énergie est d'environ $175 \text{ \AA}$ et l'écart quadratique moyen sur ce parcours ΔR de $60 \text{ \AA}$. Ces valeurs sont calculées à l'aide des formules de Lindhard⁽⁴³⁾. Deux sources ont été fabriquées, dont les caractéristiques sont les suivantes :

Source	Dose en at/cm^2	Concentration en at/at	Activité en μC
I	2×10^{13}	3×10^{-4}	200
II	5×10^{12}	$0,7 \times 10^{-4}$	110

Les sources sont soudées sur une lamelle de cuivre avant l'implantation. Après l'implantation cette lamelle est soudée sur le cryostat, la source elle-même étant plongée dans l'azote liquide.

L'ytterbium est soluble dans l'or à la température ordinaire jusqu'à une concentration égale à $\sim 0,5 \%$ ⁽⁷⁷⁾.

3°/ Les résultats

On observe l'anisotropie axiale des raies γ de 396 keV et de 283 keV à des températures comprises entre $1/30$ et $1/90^\circ\text{K}$, l'échantillon étant polarisé par un champ extérieur de 10,2 koe (Fig. VIII.3 et Fig. VIII.4).

Si nous analysons nos résultats en supposant les noyaux d'or soumis à une interaction hyperfine purement magnétique, nous en déduisons :

$$\mu H_{\text{eff}} = 0,532 \pm 0,013 \text{ Moe} \times m.n$$

Si l'on adopte comme valeur du champ hyperfin celle que nous

avons mentionnée précédemment, soit $H_{\text{eff}} = 1,80 \text{ Moe}$, il vient :

$$\mu = 0,296 \pm 0,005 \text{ m.n}$$

Il faut toutefois remarquer que la valeur du champ hyperfin que nous utilisons est déduite d'une expérience dans laquelle l'ytterbium n'est polarisé que par un champ extérieur d'environ 1 koe. Or, dans notre propre expérience, le champ extérieur est de 10,2 koe. Un tel champ détermine un léger mélange du niveau Γ_8 et du niveau Γ_7 , ce qui nous conduit à une valeur de $\langle J_z \rangle$ dans le niveau fondamental un peu supérieure à 3/2, d'où une augmentation du champ hyperfin. Le calcul se fait de la façon suivante :

On diagonalise l'hamiltonien électronique

$$\mathcal{H} = g_J \mu_B \vec{J} \cdot \vec{H} + V_c \quad (\vec{H} \text{ est le champ magnétique extérieur})$$

puis, en utilisant les valeurs des paramètres du champ cristallin données par les expériences de susceptibilité, on cherche la valeur moyenne de J_z à l'intérieur des nouveaux états propres. Nous avons effectué ce calcul pour un champ magnétique extérieur de 10,2 koe appliqué selon les trois directions : 100, 110 et 111. Nous avons trouvé :

$\langle J_z \rangle$		Direction du champ appliqué
Murani	G.Williams et al.	
1,549	1,557	100
1,550	1,558	110
1,550	1,559	111

On voit que J_z est quasiment isotrope. En supposant que le champ hyperfin est proportionnel à J_z on en déduit :

$$(\text{Murani}) \quad H_{\text{eff}} = 1,86 \text{ Moe}$$

$$(\text{G.Williams et al.}) \quad H_{\text{eff}} = 1,87 \text{ Moe}$$

d'où $\mu = 0,282 \pm 0,005 \text{ m.n}$

Enfin il reste à considérer la présence éventuelle d'effets quadru-
polaires, dont nous avons vu au chapitre I qu'ils sont proportionnels
à $\langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle$. En effet, quoique cette quantité soit nulle à l'in-
térieur d'un niveau Γ_7 pur en raison de la symétrie cubique du site de
l'ytterbium, il n'en est pas de même quand on applique un champ magné-
tique extérieur car celui-ci mélange Γ_8 à Γ_7 . Si ce champ a une valeur
de 10,2 koe nous obtenons :

$\langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle$		Direction du champ appliqué
Murani	Williams	
0,15	0,17	100
0,34	0,40	110
0,41	0,48	111
0,32	0,37	moyenne

On remarque que l'interaction quadropolaire est anisotrope.
On peut essayer d'estimer son ordre de grandeur. Nous avons vu que
(Chapitre I)

$$P_{4f} = - \frac{3e^2Q}{4I(2I-1)} (1-R)\langle r^{-3} \rangle \langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle \langle J || \alpha || J \rangle$$

$$= - 3BQ \langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle$$

La valeur de B est donnée par une expérience ENDOR sur Yb^{173} dans
 $\text{CaF}_2^{(75)}$. Il vient

$$P_{4f} = - 1,28 Q \langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle 10^{-4} \text{ en degré K}$$

On voit que, même si Q est élevé (Q = 2,8 pour l' Yb^{173} par ex.), la
valeur de P reste très faible. On peut donc négliger toute contribution

de P à l'anisotropie du rayonnement γ d'un ordre supérieur à P/kT.

D'autre part, on peut ne considérer, en première approximation (et de façon un peu arbitraire) que les trois directions du cristal que nous avons envisagées : 100, 110, 111. Dans ces conditions nous pouvons calculer P en prenant la valeur moyenne de $\langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle$ suivant ces trois directions et il vient si $\langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle = 0,34$

$$P_{4f} = - (4,4 \pm 0,3) \cdot 10^{-5} Q^\circ K \quad (Q \text{ en barns})$$

Si nous prenons comme valeur de Q celle que nous déduirons des expériences d'alignement de l' Yb^{175} dans l'éthylsulfate ($Q = 0,4 \text{ b}$), il vient :

$$P_{4f} = - 1,8 \cdot 10^{-5} Q^\circ K$$

En ajoutant cette interaction quadrupolaire à l'interaction magnétique nous obtenons le même accord expérimental que précédemment pour :

$$\mu = 0,277 \pm 0,007 \text{ m.n}$$

Notons que, même si l'estimation de Q est sérieusement fausse, la valeur de μ reste sensiblement la même, étant donné que l'interaction quadrupolaire est beaucoup plus petite que l'interaction magnétique. Par exemple si Q est trois fois plus élevé que la valeur que nous avons utilisée, nous obtenons

$$\mu = 0,268 \text{ m.n}$$

En conclusion, la valeur du moment de l' Yb^{175} déduite de l'orientation de ce noyau dans l'or est :

$$\mu = 0,277 \pm 0,007 \text{ m.n}$$

Cette valeur est bien supérieure à celle que Grace et al.⁽⁷⁶⁾ avaient déduite d'une expérience d'orientation de l' Yb^{175} dans l'éthylsulfate :

$$\mu = 0,15 \pm 0,03 \text{ m.n}$$

Nous allons toutefois montrer dans le prochain paragraphe qu'une nouvelle

le interprétation de cette dernière expérience conduit à un résultat tout-à-fait compatible avec le nôtre.

4°/ Etude de l'anisotropie γ de l' Yb^{175}Au en fonction du champ magnétique appliqué

La courbe expérimentale de l'anisotropie γ observée en fonction du champ appliqué est approximativement en accord avec la courbe théorique prédite si l'on suppose que le temps de relaxation électronique est beaucoup plus long que le temps de Larmor nucléaire (10^{-8} sec)⁽⁷⁸⁾. Ce résultat n'est pas surprenant étant donné la faible valeur du couplage d'échange J_{sf} ($\sim 0,1$ eV).

5°/ Anisotropies comparées des raies de 283 keV et de 396 keV

Nous voyons sur le schéma de désintégration de l' Yb^{175} (Fig. VIII.1) que les deux transitions γ de 283 keV et de 396 keV observées, proviennent du même niveau nucléaire d'énergie 396 keV et de spin $9/2^-$. Par conséquent les paramètres U_k sont les mêmes pour ces deux transitions.

Si l'on néglige les termes $B_4 U_4 F_4$ qui sont très petits devant les termes $B_2 U_2 F_2$ aux températures étudiées ($\frac{B_4 U_4 F_4}{B_2 U_2 F_2} < 10^{-3}$), le rapport des anisotropies γ de ces deux raies est égal au rapport de leur coefficient F_2 qui lui-même n'est fonction que des valeurs respectives des coefficients de mélange δ_{283} et δ_{396} de ces raies :

$$\frac{(F_2)_{283}}{(F_2)_{396}} = \frac{-0,440 - 0,603 \delta_{283} + 0,275 \delta_{283}^2 (1 + \delta_{396}^2)}{0,303 - 1,871 \delta_{396} - 0,020 \delta_{396}^2 (1 + \delta_{283}^2)}$$

Si nous prenons les valeurs de δ déterminées par Holmberg et al.⁽⁷²⁾ : $\delta_{283} = -0,053 \pm 0,01$ et $\delta_{396} = 0,1 \pm 0,015$, il vient :

$$\frac{(W(0) - 1)_{396}}{(1 - W(0))_{283}} = -\frac{(F_2)_{283}}{(F_2)_{396}} = 0,29 \pm 0,05$$

valeur en parfait accord avec nos propres expériences.

III - ALIGNEMENT DE L'YTTERBIUM¹⁷⁵ DANS L'ETHYLSULFATE

Dans l'expérience réalisée par Grace et al.⁽⁷⁶⁾, on utilise un monocristal d'éthylsulfate d'ytterbium. Le cristal est refroidi par démagnétisation adiabatique jusqu'à 0,014°K de telle sorte que l'axe d'alignement nucléaire coïncide avec l'axe hexagonal du cristal.

L'état fondamental électronique de l'ytterbium dans l'éthylsulfate d'ytterbium est le doublet $J_z = |\pm 3/2\rangle$ ⁽⁷⁹⁾. Grace et al. mesurent l'anisotropie des raies de 283 keV et 396 keV de l' Yb^{175} et analysent leurs résultats en supposant qu'à l'intérieur de ce doublet électronique le noyau est soumis à une interaction hyperfine purement magnétique $\mathcal{H} = A I \cdot \tilde{S}$ où $\tilde{S} = 1/2$ et où $A = 0,151 \mu/I$; cela les conduit à une valeur du moment nucléaire de l' Yb^{175} égale à $\mu = 0,15 \pm 0,03$ m.n. Mais cette analyse doit être refaite étant donné que

a) la valeur du coefficient de mélange de la raie de 283 keV adoptée par Grace est très probablement fausse

b) des expériences récentes de R.P.E. de l'ytterbium dans CaF_2 ont montré que la constante hyperfine A est plus petite ($0,13 \mu/I$) que celle que Grace a utilisée

c) on doit également tenir compte de la présence d'interactions hyperfines quadrupolaires.

En effet il existe un gradient électrique quadrupolaire au noyau de même axe que le champ hyperfin qui provient d'une part du réseau qui est hexagonal, d'autre part des électrons 4f. Pour le doublet $J_z = |\pm 3/2\rangle$ la contribution électronique est de signe opposé à celle du réseau, mais ces deux termes ont très peu de chance de s'annuler mutuellement de façon exacte.

La variation de l'anisotropie de la raie de 283 keV observée en fonction de la température semble bien confirmer ce point de vue (Fig. VIII.5). En effet l'anisotropie s'annule pour $1/T = 20^\circ\text{K}^{-1}$ ce qui, comme nous l'avons vu au chapitre V, exclut une interaction purement magnétique et suggère fortement la présence d'un léger effet quadrupolaire tendant à réaliser une orientation planaire.

Nous avons donc repris l'analyse de ces résultats en utilisant les valeurs de U_2F_2 et U_4F_4 mentionnées plus haut et

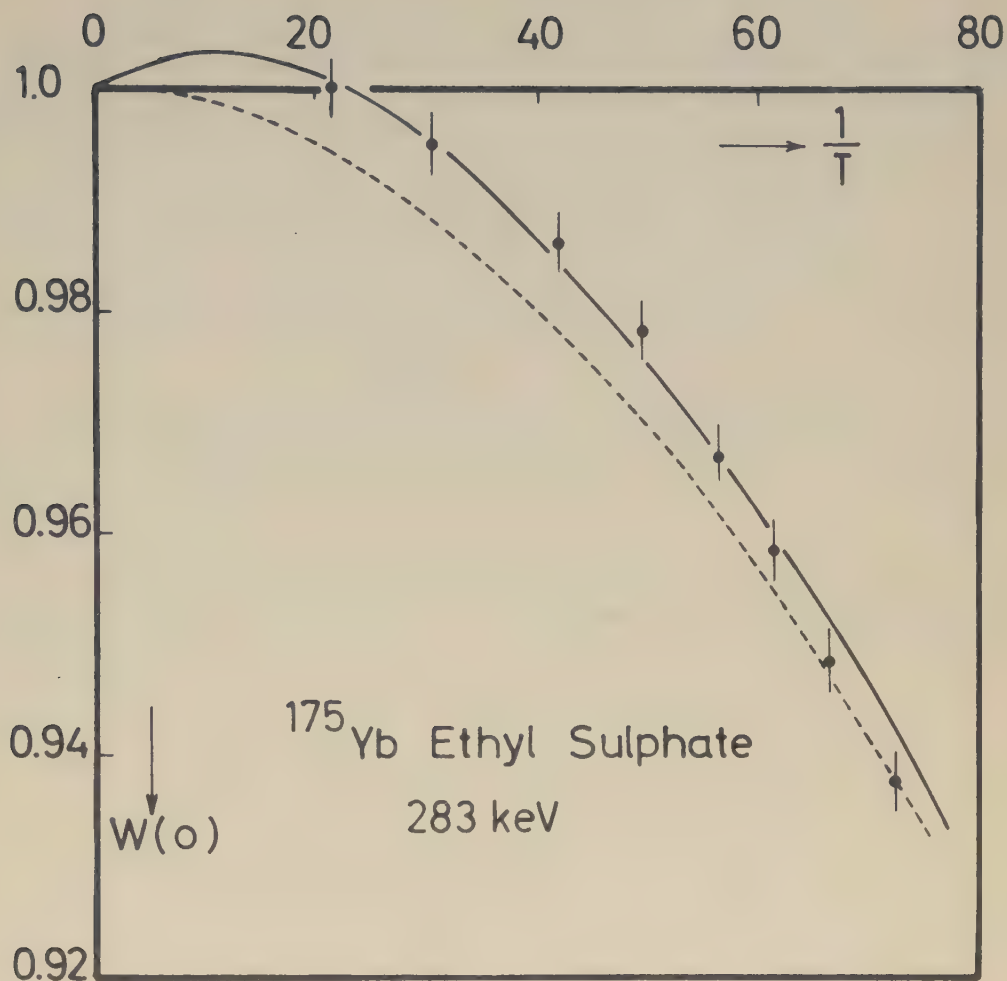


Figure VIII. 5 - Anisotropie de la raie γ de 283 keV de ^{175}Yb dans l'ethylsulfate d'après Grace et al⁽⁷⁶⁾. En pointillé la courbe calculée par ces auteurs en supposant que ^{175}Yb est soumis à une interaction hyperfine purement magnétique. En trait plein, la courbe que nous avons calculée en prenant :

$$U_2F_2 = -0,376 \quad \mu = 0,27 \text{ m.n} \quad H_{\text{eff}} = 1,77 \text{ Moe}$$

$$\text{et } P = 0,28 \cdot 10^{-3} \text{ K}$$

l'hamiltonien

$$\mathcal{H} = 0,13 \frac{\mu}{I} I_z + P \{I_z^2 - \frac{1}{3}(I + 1)\}$$

L'accord entre la courbe théorique et les points expérimentaux paraît excellent si :

$$\mu = 0,27 \pm 0,01 \text{ mn}$$

et
$$P = 0,28 \pm 0,04.10^{-3} \text{ } ^\circ\text{K}$$

Cette valeur de μ est en très bon accord avec les mesures effectuées sur Yb^{175}Au , ce qui nous paraît prouver le bien-fondé de cette nouvelle analyse.

De la valeur de P , on peut essayer de déduire la valeur du moment quadrupolaire de Yb^{175} . L'interaction hyperfine quadrupolaire P peut s'écrire :

$$P = P_{\text{Lat}} + P_{\text{pq}} + P_{4f}^{(1)} + P_{4f}^{(2)}$$

P_{Lat} est la contribution due au réseau

$$P_{\text{Lat}} = \frac{-3Q A_2^0}{I(2I-1)} (1 - \gamma_\infty)$$

Quoique la valeur de A_2^0 pour l'ytterbium dans l'éthylsulfate d'ytterbium ne soit pas connue, la recherche systématique de Blok et Shirley⁽⁸⁰⁾ sur les éthylsulfates de terres rares, permet de prédire :

$$(1 - \gamma_\infty)A_2^0 \approx (5 \pm 1) 10^4 \text{ cm}^{-1} a_0^{-2}$$

(où a_0 est le rayon de la première orbite de Bohr)

D'où
$$P_{\text{Lat}} = (-3,7 \pm 0,7) 10^{-4} Q \text{ en degré K}$$

P_{pq} est l'interaction pseudo-quadrupolaire provenant des termes non diagonaux de l'interaction hyperfine magnétique. Nous le négligerons ainsi que $P_{4f}^{(2)}$ qui est la contribution au deuxième ordre des électrons 4f.

$P_{4f}^{(1)}$ est la contribution au premier ordre des électrons 4f. Nous avons vu au paragraphe précédent qu'elle vaut :

$$P_{4f}^{(1)} = - 1,28 Q < 3J_z^2 - J(J+1) > 10^{-4} \text{°K}$$

soit comme $< 3J_z^2 - J(J+1) > = - 9$:

$$P_{4f}^{(1)} = 1,14 \cdot 10^{-3} Q \text{°K}$$

Nous avons donc finalement

$$P = (+ 7,7 \pm 0,7) Q \text{°K}$$

$$\text{D'où} \quad Q = 0,37 \pm 0,07 \text{ barn}$$

Cette valeur de Q paraît plutôt faible lorsqu'elle est comparée aux valeurs des moments quadrupolaires des noyaux ytterbium voisins de ^{175}Yb (par exemple ^{173}Yb a un moment $Q = 2,8 \text{ b}$).

IV - ORIENTATION DE L'YTTERBIUM DANS L'ARGENT

1° / L'implantation

Les ions sont implantés sous une énergie de 100 keV. A cette énergie le parcours des ions Yb non canalisés dans l'argent est d'environ 200 Å , l'écart quadratique moyen sur ce parcours étant de 68 Å .

L'argent utilisé est de pureté 5N. Une source a été fabriquée, de concentration finale en ytterbium égale à $\sim 5 \cdot 10^{-4} \text{ at/at}$. Elle a été soudée sur le cryostat par la même méthode que celle que nous avons décrite pour Yb^{175}Au .

2° / Les résultats

La source a été refroidie jusqu'à une température de $1/70 \text{°K}$ et polarisée sous un champ de 10,2 koe. L'anisotropie obtenue est inférieure à 1 %.

Ce résultat montre que l'ytterbium est à l'état divalent dans l'argent et n'est donc pas magnétique. Cette conclusion est en accord avec des mesures de susceptibilité⁽³⁾ et de résistivité⁽⁸¹⁾.

V - ORIENTATION DE L'Yb¹⁷⁵ DANS LE FER

1°/ L'implantation

L'ytterbium n'est pas soluble dans le fer, aussi l'implantation ionique est-elle la seule méthode de préparation de ce système.

Les ions sont implantés sous une énergie de 100 keV. A cette énergie le parcours des ions Yb non canalisés dans le fer est d'environ 170 Å, l'écart quadratique moyen sur ce parcours étant d'environ 50 Å.

Les cibles utilisées sont soit un polycristal de fer de fusion de zone laminé et recuit, soit un monocristal contenant dans son plan les directions 100 et 110.

Quatre sources ont été fabriquées, dont les caractéristiques sont données par le tableau suivant :

N°	Nature de la cible	Dose at/cm ²	Concentration at/at	Activité µCi au jour de l'implantation
I	polycristal	6×10^{12}	10^{-4}	100
II	polycristal	2×10^{13}	3×10^{-4}	310
III	polycristal	8×10^{13}	2×10^{-3}	560
IV	monocristal	8×10^{13}	2×10^{-3}	560

Les sources III et IV ont été implantées à l'aide d'un même faisceau, chacune n'utilisant qu'une partie de ce dernier.

Quoique le problème de la localisation des ions Yb implantés dans le fer n'ait pas été étudié, des expériences de corrélations angulaires perturbées sur Yb¹⁶⁹Fe⁽¹⁰⁾ semblent indiquer que les ions Yb occupent un site unique vraisemblablement substitutionnel lorsque les doses implantées sont de l'ordre de 10^{12} à 10^{13} at/cm². Nous verrons que nos propres résultats sont en accord avec cette conclusion mais montrent que, lorsque la dose devient plus importante ($\sim 10^{14}$ at/cm²),

il existe également un pourcentage important (35 %) d'ions qui ne sont pas substitutionnels.

Enfin signalons que la méthode utilisée pour souder les échantillons est la même que celle que nous avons précédemment décrite pour Yb^{175}Au , et que les échantillons sont polarisés sous 10,2 koe.

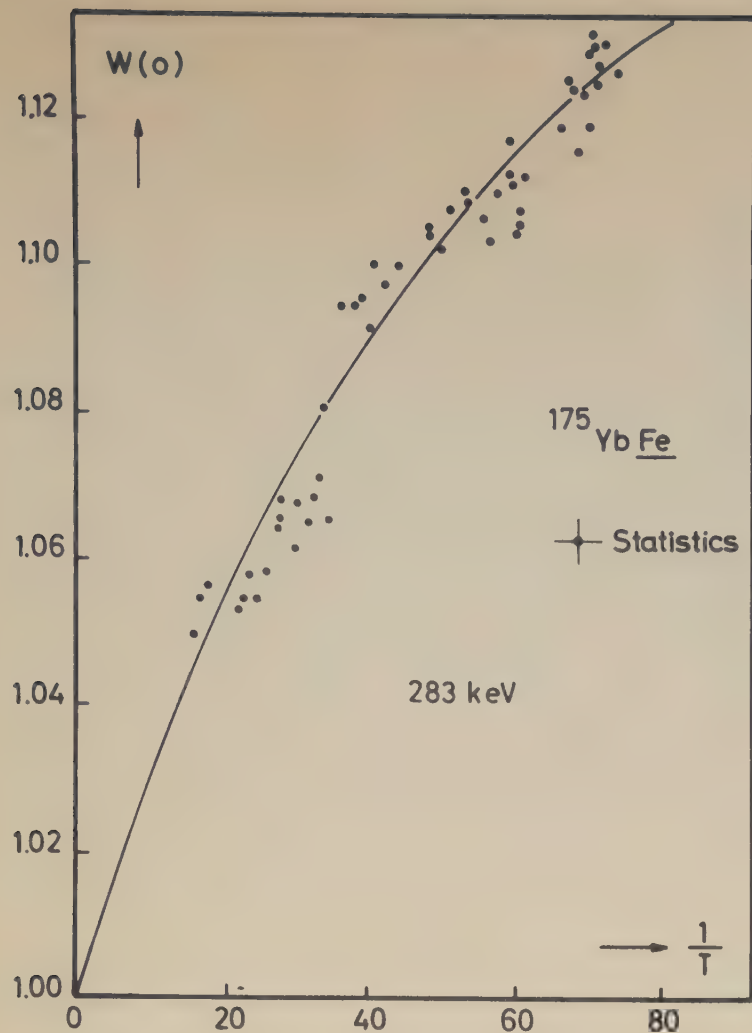
2° / Analyse des résultats

2.1. Échantillons polycristallins

Les résultats obtenus pour les échantillons I et II sont indiqués sur les figures (VIII.6) et (VIII.4). On remarque immédiatement que les anisotropies des deux raies de 283 keV et 396 keV ont un signe opposé à celui qu'elles avaient dans le cas de Yb^{175}Au .

Comme nous l'avons vu au chapitre V, ceci démontre la présence sur le site du noyau, d'une forte interaction quadrupolaire de signe positif. Cette interaction tend à déterminer une orientation planaire plutôt qu'axiale, ce qui explique le changement de signe de l'anisotropie γ . Comme celle-ci disparaît lorsqu'aucun champ magnétique extérieur n'est appliqué à l'échantillon, ce gradient électrique quadrupolaire doit comme le champ hyperfin provenir de la couche 4f et dépendre des propriétés de symétrie de celle-ci.

Dans un champ extérieur $\vec{H}_0$ suffisamment grand les moments magnétiques des atomes de fer de la matrice s'orientent parallèlement à $\vec{H}_0$ et tendent à orienter les moments des ions ytterbium par l'intermédiaire de l'échange terre rare-fer. Cette tendance à l'alignement est contrariée par le champ cristallin agissant sur la terre rare. Cependant nous avons vu au chapitre I que quelle que soit la force du champ cristallin pouvant exister dans l'échantillon, le moment de la terre rare sera parallèle à $\vec{H}_0$ si $\vec{H}_0$ coïncide avec un axe de symétrie élevée du cristal comme 100, 111 ou même 110. Ceci peut n'être plus vrai en dehors de ces axes. Néanmoins nous verrons que les résultats obtenus sur un monocristal, quoique présentant une anisotropie directionnelle, ne sont pas essentiellement différents de ceux obtenus sur les échantillons polycristallins. Nous supposons donc, de façon très approximative que l'aimantation de la terre rare est colinéaire au champ appliqué $\vec{H}_0$, que le champ hyperfin est lui aussi parallèle à $\vec{H}_0$.



Courbes théoriques et points expérimentaux de l'anisotropie de la raie γ de 283 keV de ^{175}Yb dans le fer.

Les courbes théoriques sont calculées pour

$$\begin{aligned} \mu &= 0,277 \text{ m.n} \\ H_{\text{eff}} &= 1,77 \text{ Moe} \\ P &= 19,1 \cdot 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{K.} \end{aligned}$$

Figure VIII. 6 - Polycrystal I, II.

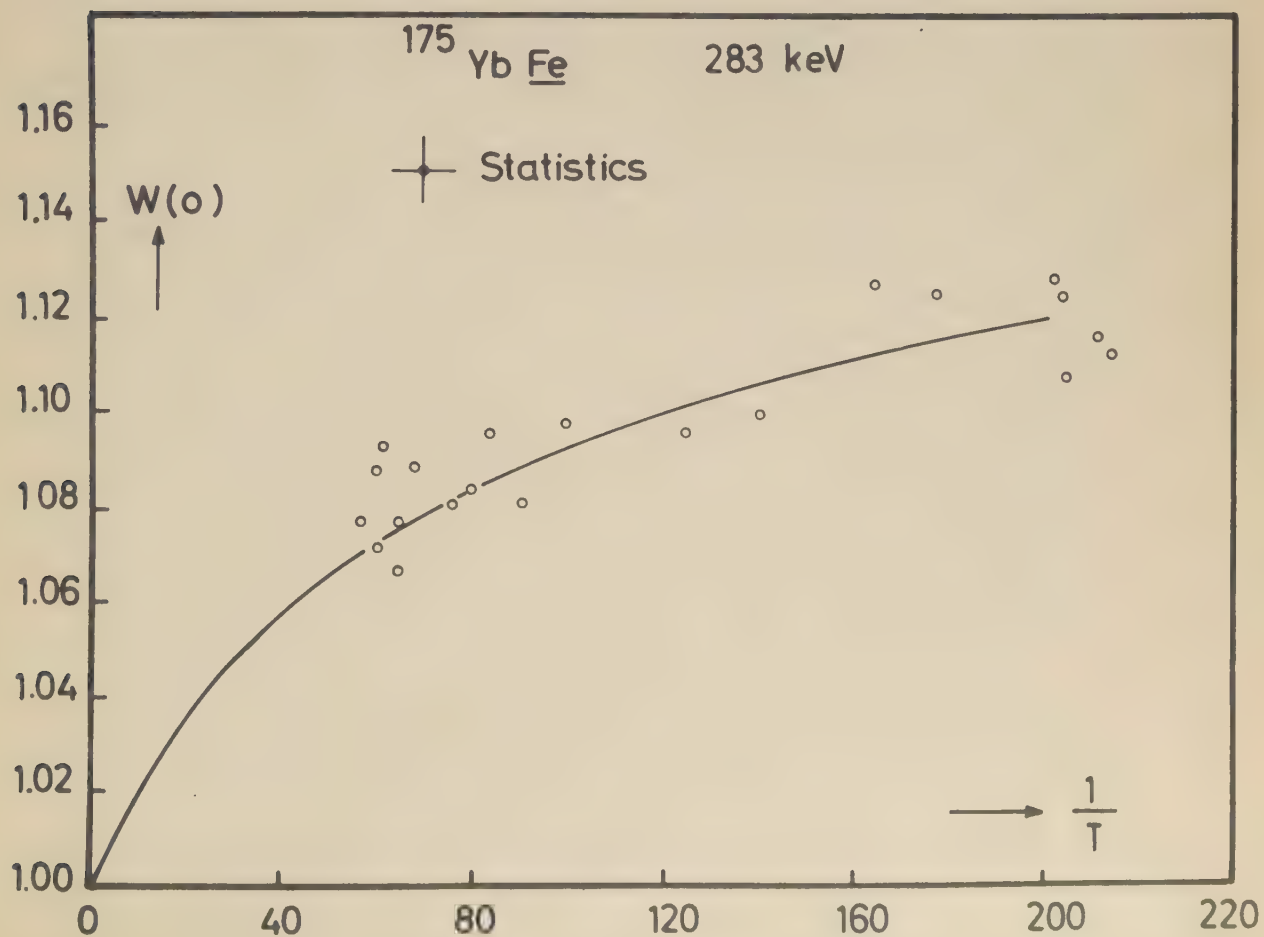


Figure VIII. 7 - Polycrystal III.

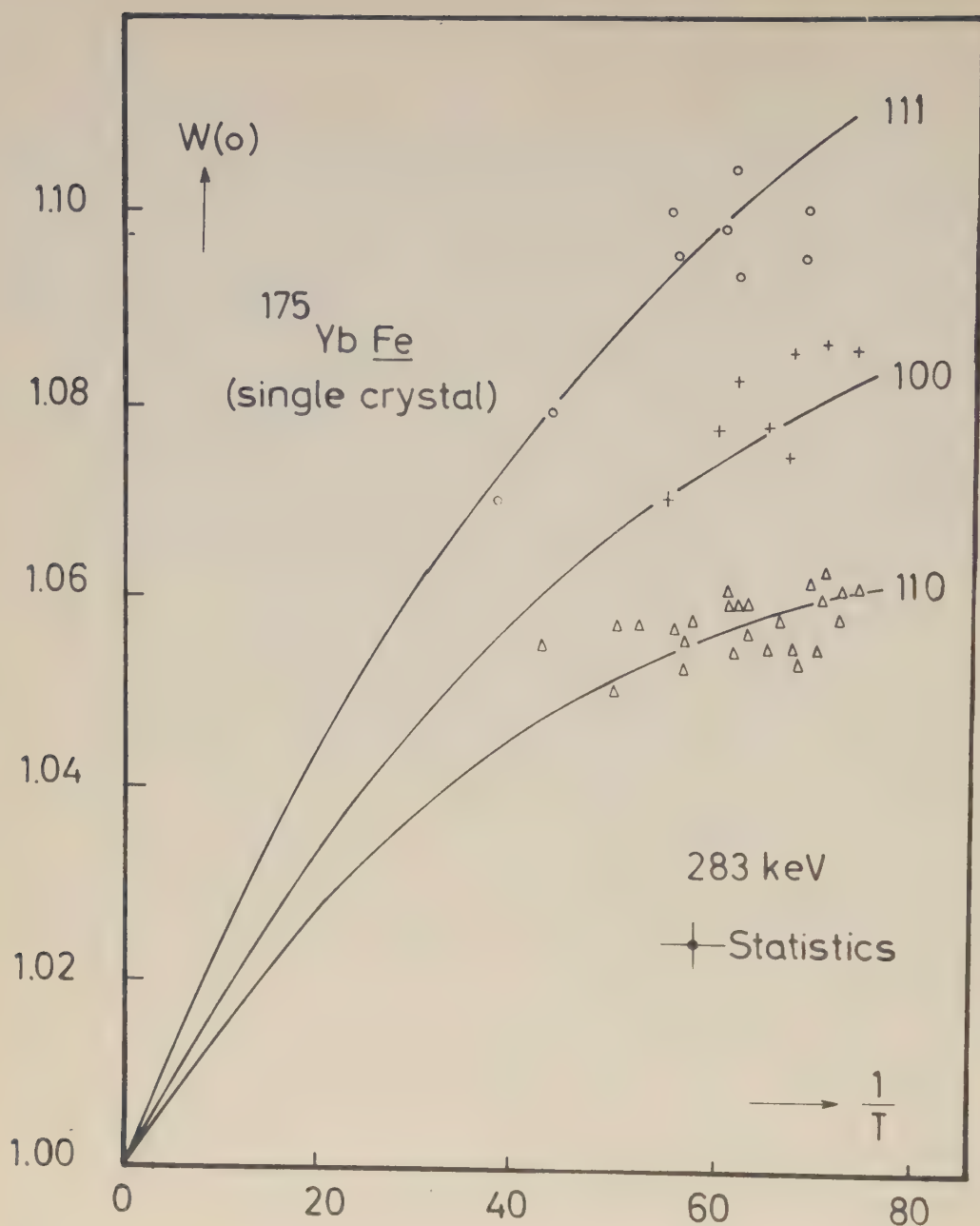


Figure VIII. 8 - Courbes théoriques et points expérimentaux de l'anisotropie de la raie γ de 283 keV de ^{175}Yb dans un monocristal de fer, le champ magnétique extérieur étant successivement appliqué dans les trois directions du cristal 111, 100, et 110. Les courbes théoriques sont calculées pour $\mu = 0,277 \text{ m.n.}$, $H_{\text{eff}} = 1,77 \text{ Moe}$

et $P = 24.10^{-4} \text{°K}$ pour 111

$P = 19,1.10^{-4} \text{°K}$ pour 100

$P = 16.10^{-4} \text{°K}$ pour 110

Seuls 63,9% des noyaux sont soumis à l'orientation,

et que le gradient quadrupolaire a la symétrie axiale par rapport à cette même direction.

Dans ces conditions l'hamiltonien hyperfin est de la forme :

$$\mathcal{H} = \vec{\mu} \cdot \vec{H}_{\text{eff}} + P \left\{ I_z^2 - \frac{1}{3} I(I+1) \right\}$$

L'accord entre théorie et expérience est très satisfaisant pour $H = 1,8 \pm 0,5 \text{ Moe}$ $P = (1,91 \pm 0,05) 10^{-3} \text{ } ^\circ\text{K}$ (l'incertitude sur P est relative à $H = 1,8 \text{ Moe}$).

La présence d'un fort champ hyperfin confirme l'hypothèse d'une couche 4f non complètement remplie, prouvant que l'ytterbium dans le fer est dans un état de valence 3 (une couche 4f complète donnerait un champ hyperfin comparable à celui du Lu dans le fer, soit $\sim 500 \text{ koe}$ ⁽⁸²⁾).

Notons que Boehm et al.⁽¹¹⁾ et Klepper et al.⁽⁸³⁾ avaient déjà mesuré à température ordinaire le champ hyperfin de l'ytterbium implanté dans le fer après excitation coulombienne. Leurs valeurs $-720 \pm 240 \text{ koe}$ et $-795 \pm 70 \text{ koe}$ sont plus petites que la nôtre, ce qui n'est pas surprenant puisque, comme nous l'avons vu au chapitre II, le champ hyperfin décroît quand la température augmente.

2.2. Echantillon monocristallin

Afin de détecter des anisotropies éventuelles de l'interaction hyperfine, nous avons utilisé un monocristal. A titre de comparaison, le polycristal III fut implanté simultanément puis refroidi jusqu'à $5 \text{ m}^\circ\text{K}$. Malheureusement les résultats obtenus sur cet échantillon montrent une réduction de l'anisotropie mesurée par rapport aux échantillons I et II (Fig. VIII.7). Ceci est très vraisemblablement dû à la dose supérieure utilisée. Toutefois on obtient un bon accord entre valeurs calculées et points expérimentaux en utilisant les mêmes valeurs de P et H_{eff} que précédemment, mais en supposant que seuls 63,9 % des noyaux peuvent être orientés. Les noyaux restants sont supposés appartenir à des ions se trouvant dans des sites très déformés et ayant leur moment "bloqué" par de forts gradients de champs locaux.

Les résultats relatifs au monocristal montrent une anisotropie marquée de l'effet avec la direction du champ appliqué (Fig.VIII.8).

A titre tout à fait indicatif, si l'on suppose arbitrairement que le champ hyperfin est constant pour les trois directions observées $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$, nous obtenons les valeurs du couplage quadrupolaire P suivantes :

Direction	$\langle 100 \rangle$	$\langle 110 \rangle$	$\langle 111 \rangle$
P	$(1,91 \pm 0,1) 10^{-3} \text{°K}$	$(1,6 \pm 0,1) 10^{-3} \text{°K}$	$(2,4 \pm 0,1) 10^{-3} \text{°K}$

Notons que, si l'on fait la moyenne de l'anisotropie du rayonnement observée suivant ces trois directions, on obtient un résultat tout à fait compatible avec ceux de l'échantillon IV.

3°/ Essai d'interprétation

En première approximation, admettons que le champ hyperfin et le couplage quadrupolaire proviennent entièrement des électrons 4f. De $H_{\text{eff}} = 1,8 \text{ Moe}$ et si nous supposons $Q = 0,37 \pm 0,07$ et $P = 1,91 \cdot 10^{-3}$ nous déduisons

$$\langle J_z \rangle = 1,5 \quad \text{et} \quad \langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle = 28 \pm 5$$

Supposons que l'interaction d'échange entre le moment de l'ytterbium et ceux du réseau fer puisse être approximativement traitée comme un champ magnétique (champ d'échange) agissant sur le spin S de l'ytterbium⁽¹²⁾. Si cette interaction était dominante, l'ytterbium serait dans l'état $|7/2\rangle$ soit $\langle J_z \rangle = 7/2$ et $\langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle = 21$, mais alors le champ hyperfin serait proche du champ de l'ion libre (4,1 Moe) et la valeur du couplage quadrupolaire P serait de signe opposé à celui de la valeur trouvée expérimentalement. Cette hypothèse est donc incorrecte.

L'hypothèse de niveaux Zeeman mélangés par un champ cristallin cubique doit aussi être rejetée. En effet elle conduit également à des signes et valeurs de P qui ne sont pas vérifiés par l'expérience quels que soient les valeurs de B_4 , B_6 et le champ appliqué. Par contre la valeur du champ hyperfin et le signe du couplage quadrupolaire sembleraient compatibles avec un état électronique $\pm |3/2\rangle$.

Il faut cependant bien noter que nous devrions alors avoir une valeur de $\langle 3J_z^2 - J(J+1) \rangle$ égale à - 9 et que cette dernière valeur paraît assez éloignée de celle que nous avons déduite de l'expérience en utilisant la valeur du moment quadrupolaire déterminée par l'alignement de ^{175}Yb dans l'éthylsulfate.

Un état électronique de base $|J_z = \pm 3/2\rangle$ n'est possible que s'il existe un terme d'ordre 2 dans le champ cristallin, de symétrie axiale autour de la direction du champ d'échange. Cherchons l'ordre de grandeur de ce terme en négligeant les termes du 4^{ème} ordre et du 6^{ème} ordre du champ cristallin. L'hamiltonien électronique s'écrit donc :

$$\begin{aligned} \mathcal{H} &= (g_J - 1)\mu_B \vec{J}/\vec{H}_{\text{ech}} + B_2\{3J_z^2 - J(J+1)\} \\ &= CJ_z + B_2\{3J_z^2 - J(J+1)\} \end{aligned}$$

L'état $\pm |3/2\rangle$ est l'état fondamental si $1/12 < |\frac{B_2}{C}| < \frac{1}{6}$. On peut évaluer C en supposant que le champ d'échange de l'ytterbium dans le fer est le même que celui du thullium dans le fer⁽¹⁰⁾ soit $H_{\text{ech}} = 2,5 \text{ Moe}$, d'où $|C| = 48^\circ\text{K}$. On en conclut que B_2 est compris entre 4 et 8°K . L'orientation nucléaire de ^{175}Yb dans un monocristal de fer étant anisotrope, ce terme serait anisotrope.

La présence d'un terme d'ordre 2 dans le champ cristallin pourrait par exemple être due à une distorsion du réseau induite par le champ magnétique appliqué dans le voisinage immédiat de la terre rare (magnétostriktion locale), car la terre rare est beaucoup plus grosse qu'un ion fer⁽⁸⁴⁾⁽⁸⁵⁾.

Pour mener plus loin cette étude, il faudrait étudier la variation du champ hyperfin et du couplage quadrupolaire avec la température, ce qui pourrait être mené à bien en utilisant l'effet Mössbauer sur ^{170}Yb par exemple. D'autre part des expériences de localisation de l'ytterbium dans le fer par diffusion Rutherford seraient d'un grand intérêt.

VI - ORIENTATION DE L'YTTERBIUM DANS LE NICKEL

1° / L'implantation

L'ytterbium étant insoluble dans le nickel, l'implantation est de nouveau la seule méthode possible pour préparer des échantillons.

Les ions sont implantés sous une énergie de 100 keV et ont un parcours moyen de $160 \text{ \AA}$, l'écart quadratique moyen sur ce parcours étant d'environ $50 \text{ \AA}$.

Les cibles utilisées sont des feuilles de nickel de fusion de zone polycristallines et laminées. Ces feuilles sont décapées avant l'implantation à l'aide d'un mélange d'acides.

Quatre sources ont été fabriquées, dont les caractéristiques sont les suivantes :

N°	Dose at/cm ²	Concentration at/at	Activité au jour de l'implantation
I	$4 \cdot 10^{13}$	$7 \cdot 10^{-4}$	$\sim 1 \text{ mC}$
II	$6 \cdot 10^{12}$	10^{-4}	$150 \text{ }\mu\text{C}$
III	$2 \cdot 10^{13}$	$4 \cdot 10^{-4}$	$430 \text{ }\mu\text{C}$
IV	$3 \cdot 10^{12}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$150 \text{ }\mu\text{C}$

Les sources sont soudées sur le cryostat suivant la même technique que pour Yb^{175}Au . Enfin les échantillons sont polarisés sous 10 koe.

2° / Analyse des résultats

L'anisotropie γ de la raie de 283 keV présente un signe opposé à celle mesurée dans le fer (c'est-à-dire qu'elle a le même signe que celle observée dans l'or). D'autre part l'anisotropie atteint très

Figure VIII. 9 - Courbes théoriques et points expérimentaux de l'anisotropie de la raie γ de 283 keV de ^{175}Yb dans le nickel. Les courbes théoriques sont calculées pour $\mu = 0,277$ m.n., $H_{\text{eff}} = 4,12$ Moe et

I $P = -86.10^{-4}^\circ\text{K}$, $y = 13,9\%$

II $P = -46.10^{-4}^\circ\text{K}$, $y = 16,5\%$

III $P = -46.10^{-4}^\circ\text{K}$, $y = 20\%$

IV $P = -46.10^{-4}^\circ\text{K}$, $y = 23,3\%$

y est le pourcentage des noyaux soumis à l'orientation.

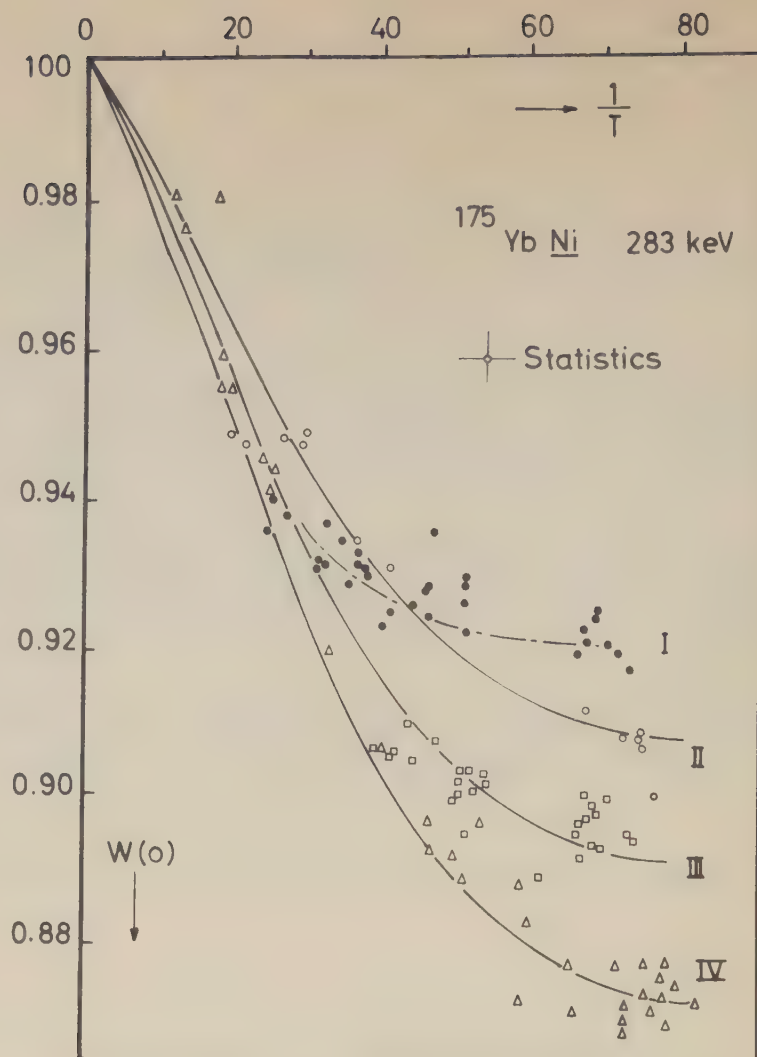
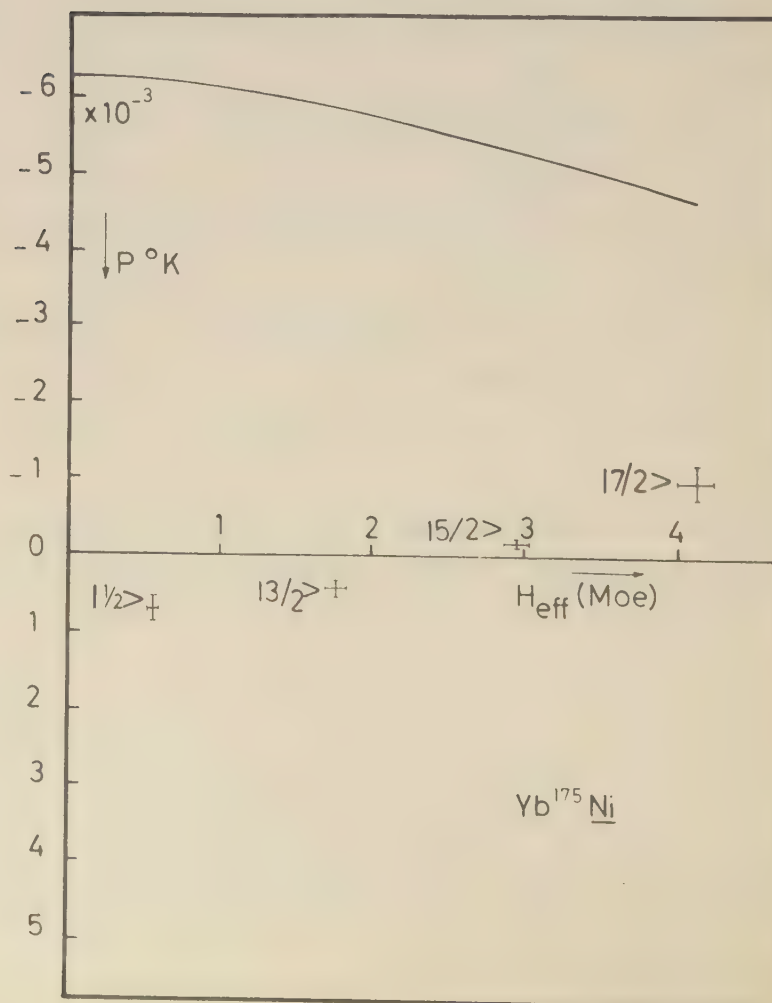


Figure VIII.10 - En trait plein l'ensemble des couples de valeurs de P et H_{eff} qui permettent de reproduire l'anisotropie γ de la raie de 283 keV observée sur l'échantillon IV.

Les points représentent les valeurs de P et H_{eff} calculés pour des états électroniques $|J, m_J\rangle$ en prenant

$\mu = 0,277 \pm 0,007$ m.n et

$Q = 0,37 \pm 0,07$ b.



vite sa valeur à saturation (Fig. VIII.9) dans chacun des cas, ce qui prouve que l'interaction hyperfine a une valeur élevée ; mais d'une part cette valeur à saturation varie d'un échantillon à l'autre, d'autre part elle est, dans chaque cas, nettement inférieure à la valeur théorique (qui, rappelons le, n'est fonction que du spin du noyau et de son état de base). Il faut donc admettre

- que l'ytterbium occupe plusieurs sortes de sites
- que dans certains de ces sites, dont le nombre varie d'un échantillon à l'autre, l'ytterbium ne peut être polarisé.

De plus on constate que l'anisotropie disparaît lorsqu'aucun champ magnétique extérieur n'est appliqué à l'échantillon. Cette constatation, jointe à la valeur élevée de l'interaction hyperfine, prouve que l'ytterbium est à l'état trivalent dans le nickel, ce que l'analyse des résultats va confirmer.

Nous utilisons pour analyser ces résultats le modèle déjà décrit dans le cas de l' Yb^{175}Fe : nous supposons que seule une certaine proportion des noyaux d'ytterbium subissent l'orientation, les noyaux restants étant tous soumis au même couplage hyperfin.

Dans cette hypothèse on ne peut expliquer les résultats sans introduire une forte interaction hyperfine quadrupolaire de constante P négative. Malheureusement, comme l'indique la figure (VIII.10), on peut obtenir une valeur de P qui conduise à un bon accord entre points calculés et points expérimentaux pour toutes les valeurs de H_{eff} comprises entre 0 et 4,12 koe (champ de l'ion libre). La figure (VIII.10), dans laquelle on suppose que l'état de base de l'ytterbium est un état axial, montre également que l'état $|\pm 7/2\rangle$ est le plus compatible avec nos résultats quoique les effets quadrupolaires correspondants soient trop faibles. Dans ces conditions nous avons $H_{\text{eff}} = 4,12$ Moe et la valeur de P déduite des points expérimentaux pour l'échantillon IV, qui présente la plus grande anisotropie γ est égale à

$$P = -(4,6 \pm 0,1) 10^{-3} \text{°K}$$

la proportion d'ions soumis à l'orientation étant de 23,3 %.

Enfin la même valeur de P déterminée plus haut permet un

accord raisonnable entre points calculés et points expérimentaux des échantillons II et III, les proportions de noyaux soumis à l'orientation étant respectivement de

échantillon II $y = 20 \%$

échantillon III $y = 16,5 \%$

Toutefois l'échantillon I, qui donne la plus petite anisotropie observée, nécessite une valeur de P plus grande :

échantillon I $P = -(8,6 \pm 0,1) 10^{-3} \text{°K}$ $y = 13,9 \%$

Cet échantillon ayant une concentration d'ions ytterbium beaucoup plus forte que tous les autres, nous pensons que cette valeur supérieure de P peut être reliée à l'augmentation du nombre des défauts.

Notons que la proportion d'ions subissant l'orientation semble décroître avec la dose reçue, quoique les échantillons II et III ne paraissent pas suivre cette règle. Cette dernière anomalie peut être due à une mauvaise estimation de la dose.

3° / Discussion

Un champ d'échange dominant largement les effets de champ cristallin donnerait naissance à un état de base électronique $\pm |7/2\rangle$, ce qui expliquerait nos résultats. Remarquons toutefois qu'un tel état n'exclut pas la présence dans l'expression du champ cristallin d'un terme d'ordre 2 mais de signe opposé à celui du champ existant dans le fer. En fait cette présence nous paraît être vraisemblable.

L'étude de ^{175}Yb dans un monocristal pourrait nous apporter de plus amples informations, mais la présence de plusieurs sites complique singulièrement le problème et montre qu'une étude préalable de la localisation des ions Yb par diffusion Rutherford s'impose.

VII - CONCLUSION

Les principaux résultats dont nous rendons compte dans ce chapitre peuvent s'énoncer ainsi :

- Yb¹⁷⁵Au :

a) L'ytterbium est à l'état trivalent dans l'or et son état électronique fondamental dans le champ cristallin cubique est Γ_7 . Ce résultat est en accord avec des mesures de susceptibilité et de R.P.E.

b) La précédente détermination du moment de l'Yb¹⁷⁵ par orientation de ce noyau dans l'éthylsulfate d'ytterbium est erronée ($\mu = 0,15 \pm 0,03$ m.n.).

Toutefois une nouvelle interprétation de cette expérience conduit à un résultat en accord avec celui que nous déduisons de Yb¹⁷⁵Au ($\mu = 0,277 \pm 0,007$ m.n.) et permet une estimation de Q ($Q = 0,37 \pm 0,07$ b).

- Yb¹⁷⁵Ag : l'ytterbium est à l'état divalent dans l'argent.

- Yb¹⁷⁵Fe : l'ytterbium est à l'état trivalent dans le fer. Le champ hyperfin et l'interaction quadrupolaire électrique mesurés sembleraient indiquer que l'état électronique fondamental de l'ion est $|3/2\rangle$. Ceci ne peut s'expliquer sans la présence d'un terme de champ cristallin axial dont l'origine est mal comprise. Une expérience dans un monocristal montre que ce terme est anisotrope.

- Yb¹⁷⁵Ni : ici encore l'ytterbium est à l'état trivalent et les interactions hyperfines magnétiques et quadrupolaires électriques mesurées semblent compatibles avec un état électronique fondamental de l'ion $|7/2\rangle$.

En conclusion, nous avons pu interpréter la plupart des expériences que nous présentons. Toutefois l'analyse de nos résultats présente des difficultés dans certains cas (Yb¹⁷⁵Ni) où les ions implantés occupent plusieurs types de sites. Une meilleure compréhension des mécanismes propres à l'implantation ionique et une étude par effet Mössbauer des interactions hyperfines de ces systèmes en fonction de la température permettraient un grand pas en avant.

C O N C L U S I O N

Pendant longtemps les expériences d'orientation nucléaire sur les impuretés diluées dans les métaux ferromagnétiques se sont limitées à l'étude de cas simples : on étudiait une situation où l'impureté était soluble dans la matrice et où son noyau, en équilibre thermique avec le réseau, n'était soumis qu'à une interaction hyperfine statique purement magnétique.

Puis un effort a été fait pour étendre ce champ de recherches.

- d'une part aux situations hors d'équilibre thermique, qui permettent la mesure du temps de relaxation nucléaire.

- d'autre part aux impuretés dont l'interaction hyperfine est plus complexe qu'une simple interaction Zeeman isotrope.

Essayons de résumer ci-après les résultats essentiels que nous avons obtenu dans ces deux domaines.

A/ Problèmes associés aux effets de relaxation.

Les formules présentées permettent de déterminer le nombre et les caractères des photons émis au cours d'une cascade $\gamma_1 - \gamma_2$ ($I_1 \xrightarrow{\vec{k}_1} I \xrightarrow{\vec{k}_2} I_f$) (eq.II.21).

On obtient ainsi :

- dans l'hypothèse d'une température infinie : la quantité $W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t-t')$ observée dans les expériences de corrélations angulaires perturbées (eq.II.29).

- pour une température quelconque (c'est à dire $\hbar\omega_n/kT$ quelconque, ω_n étant la pulsation nucléaire) mais en sommant sur la direction $\vec{k}_1$ du premier photon : l'expression de l'anisotropie observée dans les expériences d'orientation nucléaire (eq. II.40).

L'effet de la relaxation sur la distribution angulaire du rayonnement γ a été ensuite étudié, en supposant l'état intermédiaire soumis à la fois

- à un champ hyperfin statique
- et à une interaction hyperfine fluctuante

Les formules obtenues s'appliquent aux expériences de corrélations angulaires perturbées (ch.III, § II) et à celles d'orientation nucléaire (ch.III, §III).

Ce calcul a permis d'analyser au chapitre VII les résultats expérimentaux obtenus par orientation nucléaire sur la relaxation du Co^{60} et de $\text{Ag}^{109\text{m}}$ dans le fer et le nickel et du Zn^{65} dans le fer. La variation du temps de relaxation nucléaire T_1 ainsi déterminée en fonction de la température est en accord avec celle que l'on peut prévoir si le mécanisme responsable de la relaxation est de type "direct". Ce mécanisme met vraisemblablement en cause les électrons de conduction. Une étude aussi bien théorique qu'expérimentale reste à faire pour le préciser.

Enfin les effets d'un champ de radiofréquence résonnant appliqué au niveau ont été analysés aussi bien en l'absence qu'en présence de relaxation. Cette analyse permet de préciser la nature des conditions initiales dans les expériences d'orientation nucléaire où l'on mesure T_1 par observation du retour de l'anisotropie γ à sa valeur d'équilibre thermique lorsqu'on cesse d'appliquer au noyau étudié, un champ de radiofréquence résonnant (eq.IV.38 et eq. IV.45).

B/ Etudes d'interactions hyperfines complexes par orientation nucléaire.

L'étude a porté sur le cas de Yb^{175} implanté dans des matrices métalliques (ch. VIII).

Les interactions hyperfines des terres rares dans une matrice métallique (comme dans les sels) sont de nature essentiellement orbitale (le cas des terres rares dans un état S excepté). Elles sont déterminées par la nature de l'état fondamental électronique de l'ion dans le champ cristallin et le champ magnétique (extérieur ou d'échange) auxquels cet ion est soumis.

a) Résultats obtenus.

L'ytterbium a été trouvé

- magnétique donc trivalent dans l'or, le fer et le nickel.
- non magnétique donc divalent dans l'argent.

Les résultats obtenus sur Yb^{175}Au (§ II) et une nouvelle analyse de résultats antérieurement rapportés par d'autres auteurs sur Yb^{175} dans l'ethylsulfate d'ytterbium (§ III) ont permis de déterminer :

- le moment dipolaire magnétique de l' Yb^{175} : $\mu = 0,277 \pm 0,007$
- son moment quadrupolaire électrique : $Q = 0,37 \pm 0,07$ barn.

Dans les composés $\text{Yb}^{175}\underline{\text{Fe}}$ et $\text{Yb}^{175}\underline{\text{Ni}}$ (§ IV et V) a été mise en évidence la présence d'un gradient quadrupolaire dont les effets combinés d'un champ cristallin et d'un champ d'échange n'ont pu rendre compte.

Enfin on a montré que les ions d'ytterbium implantés dans le nickel (et dans le fer à des doses élevées) occupaient plusieurs types de sites et étaient soumis à plusieurs interactions hyperfines. Ce cas est également celui du cerium dans le fer (Ch. VI, §) et du cadmium dans le nickel (ch. VII, §).

b) Limites de l'orientation nucléaire.

Le caractère global de la mesure obtenue par orientation nucléaire rend délicate et parfois impossible la mesure simultanée d'interactions de nature différentes dans le même site et a fortiori dans plusieurs sites différents.

Une méthode spectroscopique telle que l'effet Mössbauer devrait permettre de distinguer les divers effets, et des expériences de localisation des ions implantés complèteraient utilement ces mesures.

Il n'en reste pas moins que l'orientation nucléaire s'est révélée comme étant un moyen d'investigation particulièrement utile pour l'étude d'impuretés diluées dans les métaux et a contribué à éclairer certains aspects nouveaux des problèmes posés par les interactions hyperfines.

REFERENCES

- 1) A.ABRAGAM and B. BLEANEY, Electron paramagnetic resonance of transition ions. Clarendon Press, Oxford (1970).
- 2) A.J. FREEMAN, Hyperfine structure and nuclear radiations, p. 427
E. MATTHIAS et D.A. SHIRLEY Eds., North Holland, Amsterdam (1968).
- 3) G. WILLIAMS and L.L. HIRST, Phys. Rev. 185, 407 (1969).
- 4) A. F. MURANI, J. of Phys. MS 234, 001 (1970).
- 5) R. ORBACH, Proc. du Colloque Ampère XVI, 1970 Bucarest
- 6) R. CHUI and R. ORBACH and B.L. GEHMAN, J. de Phys. 32, (supplément) C1-909 (1971).
- 7) J. FLOUQUET, D. MARSH, Phys. Let. 32A, 501 (1970).
- 8) L.L. HIRST and E.R. SEIDEL, J. Phys. Chem. Sol. 31, 857 (1970).
- 9) L.J.TAO, D. DAVIDOV, R. ORBACH and E.P. CHOCK, à paraître.
- 10) H. BERNAS and H. GABRIEL, Hyperfine interactions and excited nuclei, Gordon and Breach (à paraître).
- 11) F. BOEHM, G. HAGEMANN et A. WINTHER, Phys.Let. 21, 217 (1966).
- 12) P.G.E. REID, N.J. STONE and H. BERNAS, D. SPANJAARD and I.A. CAMPBELL,
Proc. Roy. Soc. A 311, 169 (1969).
- 13) E. DANIEL and J. FRIEDEL, J. Phys. Chem. Sol. 24, 1601 (1963).
- 14) I.A. CAMPBELL, Jour. of Physics C2, 1338 (1969).
- 15) H.J. ROSE, D.M. BRINK, Rev. of Mod. Phys. 39, 306 (1967).
- 16) A.R. EDMONDS, Angular momentum in quantum mechanics, Princeton University Press (1957)
- 17) D. SPANJAARD et F. HARTMANN-BOUTRON, J. de Phys. 30, 975 (1969).
- 18) J.P. BARRAT et C. COHEN-TANNOUDJI, J. de Phys. et le Rad. 22, 329 (1961).
- 19) J.P. BARRAT, J. de Phys. et le Rad. 20, 541 (1959).
- 20) S.R. de GROOT, H.A. TOLHOEK, W.J. HUISKAMP, Alpha, beta and gamma ray spectroscopy,
vol. 2, Siegbahn, North-Holland, Amsterdam (1965).
- 21) U. FANO, Rev. Mod. Phys. 29, 74 (1957).
- 22) A. OMCNT, J. de Phys. et le Rad. 26, 30 (1965).
- 23) H. SCHWEGLER, Z. für Phys. 189, 163 (1966).
- 24) M. DUCLOY et M. DUMONT, J. de Phys. 31, 419 (1970).
- 25) S.R. DE GROOT, J.A. COX, Physica 19, 683 (1953).

- 26) A. ABRAGAM and R. POUND, Phys. Rev. 92, 943 (1953).
- 27) A. ABRAGAM, The principles of nuclear magnetism , Clarendon Press Oxford (1961).
- 28) F. HARTMANN-BOUTRON, Thèse, Paris (1963).
- 29) H. GABRIEL, Phys. Rev. 181, 506 (1969).
- 30) M. BLUME, Hyperfine structure and nuclear radiations, p. 911, Matthias and Shirley Eds. North-Holland - Amsterdam (1968).
- 31) H. GABRIEL, Phys. Let. 32 A, 202 (1970).
- 32) M. BLUME, Phys. Rev. 174, 351 (1968).
- 33) M. BLUME, à paraître.
- 34) M. BLUME, à paraître.
- 35) D. SPANJAARD et F. HARTMANN-BOUTRON, Sol. St. Com. 8, 323 (1970).
Sol. St. Com. 8, p.iii (1970).
- 36) B. LEDERER et D.L. MILLS , Sol. St. Com. 5, 131 (1967).
- 37) A. HERPIN, Théorie du magnétisme P.U.F. (1968)
- 38) R.J. BLIN-STOYLE et M.A. GRACE, Handbuch der Phys. 42, 555 (Springer, Berlin).
- 39) E. MATTHIAS and R.J. HOLLIDAY, Phys. Rev. Let. 17, 897 (1966).
- 40) N.J. STONE, Hyperfine interactions p. 659, Freeman and Frankel Eds, Academic Press (1967).
- 41) D.K. HOLMES, Proc. Int. School Enrico Fermi course 18, p. 182.
- 42) J. LINDHARD, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 34, 14 (1965).
- 43) J. LINDHARD, M. SHARFF, H.E. SCHIØTT, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 33, 14 (1963).
- 44) H.E. SCHIØTT, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 35, 9 (1966).
- 45) J.A. DAVIES, J. DENHARTOG, L. ERIKSSON et J.W. MAYER, Can. Journ. of Phys. 45, 4053 (1967).
- 46) R.B. ALEXANDER, G. DEARNELEY, D.V. MORGAN, J.M. POATE, Hyperfine interactions and excited nuclei, Gordon and Breach (à paraître).
- 47) J.U. ANDERSEN, O. ANDREASEN, J.A. DAVIES and E. UGGERHØJ, Proc. Int. Conf. on Ion Implantation (Thousand Oaks 1970) à paraître dans Radiations Effects.
- 48) R. BERNAS, J. de Phys. et le Rad. 21, 1991 (1960).
- 49) J.L. SARROUY, Intern. Conf. on. Applications of ions beams to semiconductor technology. Glotin ed. OPIRYS (1967).
- 50) D. SPANJAARD, Thèse de 3ème Cycle (Orsay 1968).
- 51) R.B. ALEXANDER, N.J. STONE, D.V. MORGAN, J.M. POATE, Hyperfine interactions and excited nuclei, Gordon and Breach (à paraître).
- 52) R.A. FOX and N.J. STONE, Phys. Let. 29A, 341 (1969).
- 53) H.W. KUGEL, T. POLGA, R. KALISH and R.R. BORCHERS, Hyperfine interactions and excited nuclei, Gordon and Breach (à paraître).

- 54) P.G.E. REID, N.J. STONE and H. BERNAS, D. SPANJAARD, I.A. CAMPBELL, Proc. Roy. Soc. A 311, 169 (1969).
- 55) J. BLOK, D.A. SHIRLEY, N.J. STONE, Phys. Rev. 143, 76 (1966).
- 56) P.G.E. REID, M. SOTT, N.J. STONE, D. SPANJAARD, H. BERNAS, Phys. Let. 25A, 396 (1968).
- 57) H. DE WAARD, P. SHURER, P. INJA, L. NYESEN, Y.K. AGARWAL, Hyperfine interactions and excited nuclei. Gordon and Breach (à paraître).
- 58) L.C. FELDMAN and D.E. MURNICK, Hyperfine interactions and excited nuclei, Gordon and Breach (à paraître).
- 59) C.P. SLICHTER, Principles of magnetic resonance. Harper and Row (1965).
- 60) C. ROBERT; communication privée.
- 61) J.H. VAN VLECK, Phys. Rev. 74, 1168 (1948).
- 62) W.D. BREWER, D.A. SHIRLEY and J.E. TEMPLETON, Phys. Let. 27A, 81 (1968).
- 63) O.A. CHILASHVILI; C.J. SANCTUARY and N.J. STONE, Proc. of intern. conf. on Low Temp. Phys. (L.T. 11) p. 523 St- Andrews (1968).
- 64) P. INJA, Y.K. AGARWAL and H. DE WAARD, Phys. Rev. 188, 605 , (1969).
- 65) M.F. CRACKWELL and G.V.H. WILSON, Phys. Let. 23, 306 (1966).
- 66) W.C. EASLEY, N. EDELSTEIN, M.P. KLEIN, D.A. SHIRLEY and H.H. WICKMAN, Phys. Rev. 141, 1132 (1966).
- 67) T.F. KNOIT, H.R. ANDREWS, E.J. COHEN, F.M. PIPKIN and D.C. SANTRY, Phys. Rev. Let. 25, 543 (1970).
- 68) R.A. FOX, P.D. JOHNSTON, N.J. STONE, Phys. Let. 34A, 211 (1971).
- 69) E. MATTHIAS, Hyperfine structure and nuclear radiations p. 815, Matthias and Shirley Eds, North Holland, Amsterdam (1968).
- 70) ERDELYI, MAGNUS, OBERHETTINGER, TRICOMI, Higher transcendental functions. Bateman manuscript project, Mac Graw Hill (1953).
- 71) D.A. SHIRLEY, Hyperfine structure and nuclear radiations p. 843, Matthias and Shirley Eds, North Holland, Amsterdam (1968).
- 72) L. HOLMBERG, L. GJEDFELDT, M. GUNNERIED and B.G. PETTERSSON, Nucl. Phys. A96, 305 (1967).
- 73) L.L. HIRST, G. WILLIAMS, D. GRIFFITHS and B.R. COLES, J. Appl. Phys. 39, 844 (1968).
- 74) K.R. LEA, M.J.M. LEASK et W.P. WOLF, J. Phys. Chem. Sol. 23, 1381 (1962).
- 75) J.M. BAKER, W.B.J. BLAKE and G. COPLAND, Proc. Roy. Soc. A 309, 119 (1969).

- 76) M.A. GRACE, C.E. JOHNSON, R.G. SCURLOCK and R.T. TAYLOR, Phil. Mag. 2, 1079 (1957).
- 77) P.E. RIDER, K.A. GSCHIEDNER, J. R. and O.D. MacMASTERS, Trans. of the Metallurgical Soc. of AIME 233, 1488 (1965).
- 78) I.R. WILLIAMS, Thèse Oxford (1968).
- 79) A.H. COOKE, R.F. McKIM, H. MEYER and W.P. WOLF, Phil. Mag. 2, 928, (1957).
- 80) J. BLOK and D.A. SHIRLEY, Phys. Rev. 143, 278 (1966).
- 81) V. ALLALI, P. DONZE et A. TREYVAUD, Sol. State Com. 7, 1241 (1969).
- 82) B.I. DEUTCH, G.B. HAGEMANN, K.A. HAGEMANN et S. OGAZA, Hyperfine structure and nuclear radiations, p. 731, Matthias and Shirley Eds, North Holland, Amsterdam (1968).
- 83) O. KLEPPER, H. SPEHL and N. WERTZ, Z. für Phys. 217, 425 (1968).
- 84) F.H. SPEDDING and A.H. DAANE, The rare earths, Wiley and Sons, New York (1961).
- 85) A. AHARONI, Phys. Rev. B 2, 3794 (1970).

APPENDICE I

Propriétés des matrices M : théorèmes utilisés,

Grandes lignes des démonstrations

I. - Théorèmes utilisés.

1°) Théorème de Frobenius-Schur (Bodewig, Matrix calculus p.217, eq.2.1)

$$\det \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \det A \times \det (D - CA^{-1} B) \quad (A.1)$$

2°) Théorème d'Aitken (Aitken, Determinants and Matrices, p. 148)

$$\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} (A - BD^{-1} C)^{-1} & (BD^{-1} C - A)^{-1} BD^{-1} \\ D^{-1} C (BD^{-1} C - A)^{-1} & (D - CA^{-1} B)^{-1} \end{bmatrix} \quad (A.2)$$

Ce théorème est également cité par Gabriel ⁽²⁹⁾ eq. 54 a)

3°) Relation de Bodewig -Bodewig, Matrix Calculus eq. 2.3 b)

$$\begin{aligned} (A - BD^{-1} C)^{-1} &= A^{-1} + A^{-1} B (D - CA^{-1} B)^{-1} CA^{-1} \quad \text{ou} \\ (D - CA^{-1} B)^{-1} &= D^{-1} + D^{-1} C (A - BD^{-1} C)^{-1} BD^{-1} \end{aligned} \quad (A.3)$$

4°) Inégalité de Hadamard

$$\det (\vec{X}_1, \vec{X}_2, \dots, \vec{X}_n) \leq \|\vec{X}_1\| \dots \|\vec{X}_n\| \quad (A.4)$$

Les $\vec{X}$ sont des vecteurs dont les composantes sont données par les éléments d'une colonne du déterminant.

II - Grandes lignes des démonstrations.

A) Préliminaire

Etude du déterminant de la matrice $[P_{\mu\nu}]$: théorème de Frobenius-Schur

B) Propriétés des matrices M_{k_0}

1/ On démontre par récurrence que quel que soit k_0

$$\alpha) \text{ Pour la matrice } M_{k_0}, \quad \begin{bmatrix} k_0 & \\ M'_{k_0} & k_0 \end{bmatrix} \sim \begin{bmatrix} k_0 & \\ M_{k_0} & k_0 \end{bmatrix}^{-1}$$

$\beta)$ Aucun des éléments de M_{k_0} ne tend vers l'infini quand $\omega_1 \rightarrow \infty$

Principe de la démonstration : on admet que ces propriétés sont vraies pour M_{k_0} et on démontre qu'elles le sont alors aussi pour M_{k_0+1} compte tenu du fait que A_{k_0+1} a les mêmes propriétés que M_{k_0} .

Considérer la matrice M_{k_0+1} sous la forme schématique $\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix}$. Son inverse est donné par le théorème d'Aitken.

a) Etude de $(D - CA^{-1} B)^{-1}$

Appliquer deux fois la relation de Bodewig

$$[D - CA^{-1} B]^{-1} = D^{-1} + D^{-1} C A^{-1} B D^{-1} + D^{-1} C A^{-1} B (D - CA^{-1} B)^{-1} C A^{-1} B D^{-1}$$

Les éléments de matrice de D^{-1} sont connus car $D^{-1} = \begin{bmatrix} k_0+1 \\ M_{k_0+1, k_0+1} \end{bmatrix}^{-1}$

Eléments de matrice de $D^{-1} C A^{-1} B D^{-1}$: en utilisant l'hypothèse α on montre qu'ils sont plus petits que les éléments homologues de D^{-1} par un facteur $1/\omega_1^2$

Eléments de matrice de $D^{-1} C A^{-1} B (D - CA^{-1} B)^{-1} C A^{-1} B D^{-1}$:

Théorème de Hadamard : $\det (D - CA^{-1} B) \sim \det D \sim \omega_1^{2k_0+2}$. Par suite

Eléments de matrice de $(D - CA^{-1} B)^{-1} \leq$ constantes.

Par suite, les éléments de matrice considérés sont plus petits que ceux de D^{-1} par un facteur $1/\omega_1^2$.

Donc :

$$(D - CA^{-1} B)^{-1} \sim D^{-1} \quad (A.5)$$

Ceci justifie l'hypothèse α

b) Application

En utilisant (A.5) et la relation de Bodewig

$$(A - BD^{-1} C)^{-1} = A^{-1} + A^{-1} B (D - CA^{-1} B)^{-1} C A^{-1} \sim A^{-1} + A^{-1} B D^{-1} C A^{-1}$$

Les éléments de A^{-1} sont finis par hypothèse, ceux de D^{-1} par démonstration.

Il en résulte que ceux de

$$(A - BD^{-1} C)^{-1}, \quad D^{-1} C (A - BD^{-1} C)^{-1}, \quad (A - BD^{-1} C)^{-1} B D^{-1}$$

le sont aussi. Ceci justifie l'hypothèse β

2/ Quel que soit k

$$[M'_{kk}] \sim [M_{kk}]^{-1}$$

On commence par démontrer que pour la matrice M_{k_0+1}

$$[M'_{k_0 k_0}] \sim [M_{k_0 k_0}]^{-1}$$

Ceci se fait en partitionnant la matrice $A - BD^{-1} C$ en $A' B' C' D'$ (avec $M'_{k_0 k_0} = (D' - C' A'^{-1} B')^{-1}$) et en utilisant la propriété α . On généralise de proche en proche.

De $\begin{bmatrix} k_o+1 \\ M'_{k_o k_o} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} k_o+1 \\ M_{k_o k_o} \end{bmatrix}^{-1}$ et de α il résulte que

$$(A - BD^{-1}C)^{-1} \sim A^{-1} \quad (A.6)$$

3/ Démonstration par récurrence du fait que les matrices

$$\begin{bmatrix} k_o \\ M'_{k_o k_o} \end{bmatrix}_{k \neq k'} \rightarrow 0 \text{ quand } \omega_1 \rightarrow \infty$$

Supposer la propriété vraie pour M_{k_o} et donc A_{k_o+1} et s'appuyer sur (A.6)

4/ Démonstration par récurrence du fait que pour les éléments $(i,2)$ de $M_{k_o}^{-1}$

$$\begin{bmatrix} M_{k_o}^{-1} \end{bmatrix}_{i2} \sim \omega_1^{-k} \text{ si } i \leftrightarrow k \text{ et } q \text{ de même parité}$$

$$\sim \omega_1^{-(k+1)} \text{ si } i \leftrightarrow k \text{ et } q \text{ de parités opposées}$$

utilise toujours la relation (A.6).

C) Calcul effectif des ρ_k^q lorsque $\omega_1 \rightarrow \infty$

On montre par récurrence en utilisant (A.5) et (A.6) que le calcul de ρ_k^q ne fait intervenir que la matrice A_{k+1} . Il suffit donc de calculer les éléments $(i,2)$ de l'inverse de cette matrice.

